

## MASTER

### Beschrijving van de quantum design MPMS-5S SQUID-Magnetometer en onderzoek naar de magnetische eigenschappen van granulaire Co/Ag multilagen

Bongers, M.A.

*Award date:*  
1995

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

#### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

#### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Technische Universiteit Eindhoven  
Faculteit der Technische Natuurkunde  
Vakgroep Vaste Stof Fysica

Beschrijving van de Quantum Design  
MPMS-5S  
SQUID-Magnetometer  
&  
Onderzoek naar de magnetische eigen-  
schappen van granulaire Co/Ag multilagen

M.A. Bongers  
juni 1995

Verslag van een afstudeeronderzoek in de groep Coöperatieve Verschijnselen van de vakgroep Vaste Stof Fysica in de periode april '94 tot juni '95.

Begeleider: Ir. M.M.H. Willekens  
Afstudeerhoogleraar: Prof. Dr. Ir. W.J.M. de Jonge

Het in dit verslag beschreven onderzoek is uitgevoerd in het kader van een samenwerkingsverband tussen de groep Coöperatieve Verschijnselen van de Technische Universiteit Eindhoven en de groep Magnetisme van het Philips Natuurkundig Laboratorium te Eindhoven.

## SAMENVATTING

In april 1994 is in de groep Coöperatieve Verschijnselen een SQUID-magnetometer van de firma Quantum Design in gebruik genomen. Het afstudeerwerk waarover dit verslag handelt bestond uit het beheren van de opstelling, het uitvoeren van magnetisatiemetingen en het onderzoeken van de mogelijkheden en beperkingen van de SQUID.

Onderzocht is welke factoren invloed hebben op het meetresultaat. De belangrijkste blijken te zijn: de afmetingen van het sample, drift in het aangelegde magneetveld en ruis in de opstelling. De eindige afmetingen van het sample veroorzaken een afwijking als functie van de samplegrootte. Deze afwijking liep op tot ongeveer 17% voor de grootste samples. Omdat ijkmetingen zijn gedaan met een serie samples met variërende lengte kan voor deze afwijking enigszins worden gecorrigeerd. Drift in het aangelegde magneetveld treedt op na een veldverandering. Hierdoor ontstaat een spreiding in de meetresultaten. Door een pauze in te lassen tussen het instellen van het veld en het meten van het moment kan deze spreiding voor een groot deel worden weggenomen. De ruis in de opstelling zelf zorgt ervoor dat het minimale te meten moment ongeveer  $5 \times 10^{-7}$  emu is. De nauwkeurigheid van de metingen is  $10^{-6}$  tot  $10^{-7}$  emu. Bij het meten van kleine momenten ( $< 10^{-5}$  emu) is het zinvol meerdere metingen per meetpunt te middelen om een betere signaal-ruis verhouding te krijgen. Het blijkt echter dat middelen van meer dan 5 scans geen verbetering van het resultaat oplevert.

Als voorbeeld van de mogelijkheden die de opstelling biedt worden in dit verslag metingen aan Co/Ag multilagen besproken. Er zijn magnetisatiecurves,  $M(H)$ , gemeten voor verschillende temperaturen. Verder zijn er metingen gedaan als functie van de temperatuur bij een constant veld, z.g.n. Field Cooled en Zero Field Cooled metingen. Aangetoond is dat het Co bij kleine nominale laagdikten (2-4 Å) in clusters groeit en niet in continue lagen. Bewijzen hiervoor zijn ten eerste de vorm van de  $M(H)$ -curves. Deze kunnen worden beschreven m.b.v. de Langevin-vergelijking. Ten tweede bestaat er een z.g.n. blocking-temperatuur die bepaalt kan worden uit de Z.F.C.- en F.C.-metingen. De grootte van de clusters is bepaald door ervan uit te gaan dat deze bolvormig zijn en dat de verdeling van de grootte te beschrijven valt met de lognormale verdelingsfunctie. Op deze manier is voor het sample met een nominale Co-dikte van 2 Å een gemiddelde clusterdiameter gevonden van ongeveer 17.7 Å.

# INHOUDSOPGAVE

## Inleiding

<b>1. De theorie van de SQUID</b>	<b>1</b>
1.1 Supergeleiding . . . . .	1
1.2 Supergeleidende ring . . . . .	6
1.3 Josephson-juncties . . . . .	10
1.4 Supergeleidende ring met junctie . . . . .	13
1.5 Ring gekoppeld aan tankcircuit . . . . .	16
<b>2. De opstelling</b>	<b>21</b>
2.1 Opbouw van de opstelling . . . . .	21
2.2 Temperatuurregeling . . . . .	23
2.3 Veldregeling . . . . .	27
2.4 De SQUID-respons . . . . .	29
2.5 Sequence files . . . . .	36
2.6 Samplehouders . . . . .	39
<b>3. Meetnauwkeurigheid</b>	<b>43</b>
3.1 Storende invloeden . . . . .	43
3.2 Controle van de kwaliteit van een meting . . . . .	51
3.3 De kwaliteit van een meting verbeteren . . . . .	52
3.4 Conclusies . . . . .	53
<b>4. Granulaire Co/Ag multilagen</b>	<b>55</b>
4.1 NMR Metingen . . . . .	55
4.2 Magnetisatiemetingen . . . . .	56
4.3 Conclusies . . . . .	63
<b>Appendices</b>	<b>65</b>
<b>Referenties</b>	<b>71</b>
<b>Dankwoord</b>	<b>73</b>

# INLEIDING

Binnen de groep Coöperatieve Verschijnselen wordt onderzoek gedaan aan magnetische multilagen. Dit zijn systemen opgebouwd uit dunne laagjes van afwisselend magnetisch en niet-magnetisch materiaal. De technieken die gebruikt worden voor het fabriceren van deze systemen zijn zo nauwkeurig dat lagen van enkele atomen dik gemaakt kunnen worden. In 1988 is ontdekt dat de magnetische lagen in een multilaagsysteem ferromagnetisch of antiferromagnetisch gekoppeld kunnen zijn. Als de momenten van de lagen antiferromagnetisch geordend zijn kan de koppeling doorbroken worden door een extern magneetveld aan te leggen. Het blijkt dat de elektrische weerstand van een multilaagsysteem met ferromagnetisch geordende momenten verschilt van het geval waarin de momenten antiferromagnetisch geordend zijn. We kunnen de weerstand van zo'n systeem dus veranderen door een extern magneetveld aan te leggen. Deze eigenschap heet Giant Magneto Resistance. Een mogelijke toepassing die deze eigenschap biedt is het gebruik in koppen voor het uitlezen van magnetische informatiedragers als computerdiscs en audiocassettes.

Om iets te weten te komen over bijv. de koppelingssterkte of de grootte van het magnetische moment van een systeem worden magnetisatiemetingen gedaan: het magnetische moment van een stof of systeem wordt bepaald als functie van het aangelegde veld,  $M(H)$ , en als functie van de temperatuur,  $M(T)$ . Er bestaan vele methoden om de magnetisatie van een sample te meten. Binnen de groep zijn bijvoorbeeld een fluxgate-magnetometer en een meter gebaseerd op het magneto optische Kerr effect (MOKE) in gebruik.

In april 1994 is in de groep een SQUID-magnetometer in gebruik genomen. Een SQUID is het meest gevoelige instrument voor het meten van magnetische momenten dat momenteel bestaat. Andere eigenschappen van deze opstelling zijn een groot temperatuurgebied waarbij gemeten kan worden (1.7 tot 400K) en een groot bereik van het aan te leggen magneetveld (-5 tot 5T). Deze combinatie van eigenschappen wordt in geen enkele andere opstelling gevonden.

De hoge nauwkeurigheid van de SQUID-opstelling wordt onder meer verkregen door gebruik te maken van supergeleidende oppikspoelen en een zeer gevoelige flux-spanning omzetter (de feitelijke SQUID). De werking van een SQUID is gebaseerd op de eigenschap dat de flux door een supergeleidende ring gequantiseerd is en op de eigenschappen van een z.g.n. Josephson-junctie. In hoofdstuk 1 wordt hier in meer detail op ingegaan.

In hoofdstuk 2 worden wat meer praktische zaken over de opstelling verteld, zoals de werking van de temperatuur- en veldregeling. Verder wordt in dit hoofdstuk afgeleid hoe uit het uitgangssignaal van de SQUID het magnetische moment van een sample wordt bepaald. De opstelling is volledig geautomatiseerd, d.w.z. dat het instellen van alle parameters via de computer verloopt. Dit biedt ook de mogelijkheid om metingen te programmeren, waarna deze automatisch worden uitgevoerd. Hoe dit in zijn werk gaat komt ook in dit hoofdstuk aan de orde.

De nauwkeurigheid waarmee metingen kunnen worden uitgevoerd blijkt van een aantal factoren af te hangen. De belangrijkste zijn: de afmetingen van het sample, drift in het aangelegde magneetveld en ruis. De invloed van deze en andere storende invloeden wordt bekeken in hoofdstuk 3. In dit hoofdstuk wordt ook gekeken in hoeverre de meetnauwkeurigheid in de praktijk overeenkomt met de specificaties van de fabrikant.

Ten slotte wordt in hoofdstuk 4 een voorbeeld gegeven van de bijdrage die metingen met de SQUID kunnen hebben in het onderzoek aan multilaag-systemen. Resultaten worden gepresenteerd van metingen aan Co/Ag multilagen met een kleine nominale Co-dikte (2-6Å). Met behulp van NMR-metingen waren sterke aanwijzingen gevonden dat Co bij kleine nominale dikten in clusters groeit en niet in continue lagen. Magnetisatiemetingen tonen inderdaad het bestaan van clusters aan. Verder blijkt het ook mogelijk om uit de metingen van het magnetische moment als functie van het aangelegde veld de grootte van de clusters te bepalen.



# HOOFDSTUK 1: DE THEORIE VAN DE SQUID

De SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) is het meest gevoelige instrument voor het meten van magnetische momenten. Een SQUID bestaat uit een gesloten supergeleidende kring die een Josephson junctie bevat. De werking is gebaseerd op de gequantiseerde toestand van de ring en het niet lineaire gedrag van de junctie.<sup>1-4</sup>

Het gedrag van een supergeleidende ring in een aangelegd magneetveld wordt beschreven in paragraaf 1.2, de Josephson junctie komt aan de orde in paragraaf 1.3. Deze twee elementen worden samengevoegd in paragraaf 1.4. De SQUID in onze opstelling is een z.g.n. rf-SQUID. Wat dat inhoudt wordt besproken in paragraaf 1.5. We beginnen dit hoofdstuk met een beknopt overzicht van de theorie van supergeleiders.<sup>5-8</sup> Supergeleiding speelt een belangrijke rol in de opstelling. Zoals gezegd in de SQUID, maar ook de spoel waarmee magneetvelden worden opgewekt en het oppikspoelenstelsel zijn supergeleidend.

## 1.1 SUPERGELEIDING

### 1.1.1 Inleiding

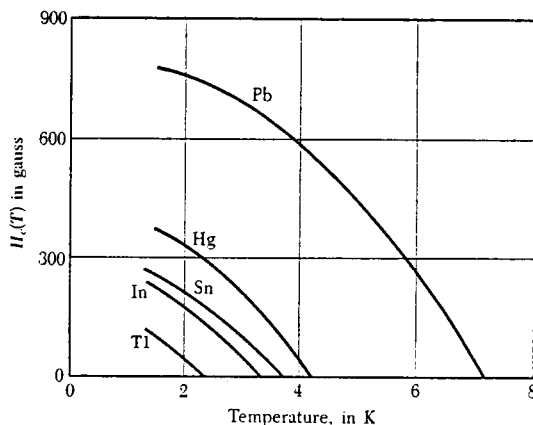
De elektrische weerstand van veel metalen en legeringen daalt snel naar nul als het materiaal wordt afgekoeld naar een voldoende lage temperatuur. De stoffen maken bij een kritieke waarde van de temperatuur,  $T_c$ , een faseovergang van de normale toestand naar de supergeleidende toestand. Deze kritieke temperatuur ligt vaak in het temperatuurgebied van vloeibaar helium. Deze eigenschap, oneindige elektrische geleidbaarheid in supergeleiders, werd voor het eerst waargenomen door Kamerlingh Onnes in 1911.

De tweede belangrijke eigenschap van supergeleiders werd ontdekt in 1933 door Meissner en Ochsenfeld. Zij vonden dat een supergeleider in een zwak veld zich gedraagt als een perfecte diamagneet. Dat wil zeggen dat een supergeleidend materiaal geen magnetische flux toelaat. Bovendien bleek dat de magnetische flux uit het materiaal wordt geweerd als een aanvankelijk normaal materiaal wordt afgekoeld tot onder de overgangstemperatuur. Een voldoende sterk magnetisch veld kan de supergeleidende toestand opheffen. De kritische waarde van het aangelegde veld wordt aangeduid met  $H_c(T)$ . Op de kritieke temperatuur is het kritische veld nul:  $H_c(T=T_c) = 0$ . (We gaan hier uit van een type I supergeleider.) Voorbeelden van het verband tussen het kritieke veld en de temperatuur voor verschillende supergeleiders staan in figuur 1.1.

De supergeleidende toestand is een geordende toestand van de geleidingselektronen van het metaal of de legering. De ordening uit zich in het vormen van zwak gekoppelde elektronparen. Beneden de overgangstemperatuur bevindt een deel van de elektronen zich in de geordende toestand. De fractie geordende elektronen loopt van nul als  $T = T_c$  naar één als  $T = 0$ . Het mechanisme dat de vorming van elektronparen mogelijk maakt werd voor het eerst beschreven door Bardeen, Cooper en Schrieffer in 1957. Zij ontwikkelden een allesomvattende microscopische quantumtheorie voor supergeleiding, de zogenaamde B.C.S.-theorie.

Er bestaan ook macroscopische theorieën, die meer fenomenologisch van aard zijn. In dit hoofdstuk zullen de London-theorie en de Ginzburg-Landau-theorie worden besproken. Deze macroscopische theorieën beschrijven de eigenschappen van supergeleiders die volgen uit experimenten zonder deze eigenschappen vanaf een microscopisch niveau af te leiden. Omdat de

microscopische theorie in veel praktische gevallen moeilijk is toe te passen, wordt veel gebruik gemaakt van de fenomenologische vergelijkingen.



*Figuur 1.1: Experimentele curves voor het kritische veld als functie van de temperatuur voor verschillende supergeleiders. Een stof is supergeleidend onder de curve en normaal erboven.*

We zullen in de volgende paragraaf de twee hoofdeigenschappen van supergeleiders, oneindig grote geleiding en perfect diamagnetisme, beschrijven met behulp van de London theorie. In latere paragrafen zal iets dieper worden ingegaan op de Ginzburg-Landau theorie en de B.C.S.-theorie.

### 1.1.2 De London-theorie

De twee basiseigenschappen van supergeleiding werden in 1935 voor het eerst beschreven door de broers F. en H. London. De afleiding van de London-vergelijkingen is gebaseerd op de vergelijking voor de kanonieke impuls van een elektron:

$$\vec{p} = m\vec{v} + e\vec{A} \quad 1.1$$

Hierin zijn  $m$ ,  $e$  en  $\vec{v}$  de respectievelijke massa, lading en snelheid van het elektron.  $\vec{A}$  is de vectorpotentiaal gedefinieerd door:

$$\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A} \quad 1.2$$

Als we aannemen dat in de afwezigheid van een aangelegd magnetisch veld de elektronen een grondtoestand hebben zonder een netto impuls, volgt hieruit voor de gemiddelde snelheid in de aanwezigheid van een veld:

$$\langle \vec{v} \rangle = -\frac{e\vec{A}}{m} \quad 1.3$$

Deze vergelijking geldt als men ervanuit gaat dat de golf functie van de supergeleidende elektronen 'stijf' is en in de grondtoestand blijft met  $\langle \vec{p} \rangle = 0$ , ook als er een veld aanwezig is. Als we de dichtheid van supergeleidende elektronen in deze toestand aanduiden met  $n_s$ , vinden we voor de



stroomdichtheid van supergeleidende elektronen:

$$\vec{j} = n_s e \langle \vec{v} \rangle = -\frac{n_s e^2 \vec{A}}{m} = -\frac{\vec{A}}{\Lambda} \quad 1.4$$

Hierin is geïntroduceerd:

$$\Lambda = \frac{m}{n_s e^2} \equiv \mu_0 \lambda_L^2 \quad 1.5$$

We kunnen formule 1.4 zien als een supergeleidend analogon van de wet van Ohm. Beneden de overgangstemperatuur  $T_c$  komen twee soorten elektronen voor: elektronen die zich Ohms gedragen en supergeleidings-elektronen die zich gedragen volgens vergelijking 1.4.

Als we links en rechts in formule 1.4 de tijdsafgeleide nemen, vinden we de eerste London-vergelijking:

$$\vec{E} = \frac{\partial}{\partial t} (\Lambda \vec{j}) \quad 1.6$$

Hierin is gebruikt gemaakt van:

$$\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} = -\vec{E} \quad 1.7$$

Vergelijking 1.6 beschrijft de perfecte geleiding, omdat een elektrisch veld de supergeleidende elektronen versnelt, in plaats van hun snelheid in stand houdt zoals in een normale geleider.

Als we links en rechts in formule 1.4 de rotatie nemen, vinden we de tweede London-vergelijking:

$$\vec{\nabla} \times \vec{j} = -\frac{\vec{B}}{\Lambda} \quad 1.8$$

Hierin is gebruik gemaakt van de definitie van de vectorpotentiaal, vergelijking 1.2.

Met deze vergelijking kunnen we het Meissner-effect beschrijven. Volgens een van de microscopische Maxwell-vergelijkingen geldt namelijk:

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j} \quad 1.9$$

Hierbij zijn we uitgegaan van de situatie met stationaire velden, omdat we alleen geïnteresseerd zijn in het statische Meissner-effect. Als we de rotatie nemen van deze vergelijking krijgen we:

$$-\nabla^2 \vec{B} = \mu_0 \vec{\nabla} \times \vec{j} \quad 1.10$$

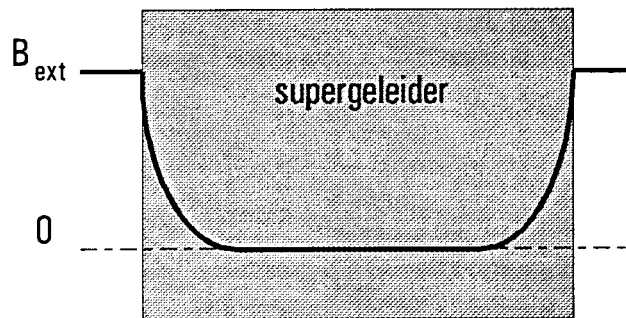
Combineren met de tweede London-relatie, vergelijking 1.8, geeft:

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{\vec{B}}{\lambda_L^2} \quad 1.11$$

In één dimensie, we nemen hier als voorbeeld de x-richting, heeft deze differentiaal-vergelijking als oplossing:

$$B(x) = B(0) \exp\left(-\frac{x}{\lambda_L}\right) \quad 1.12$$

Hierin is  $B(0)$  het veld aan de rand van de supergeleider, in  $x = 0$ . We zien dat een aangelegd magnetisch veld  $B_{ext}$  het materiaal binnendringt, maar de amplitude van dit binnendringende veld neemt exponentieel af met de afstand tot de rand van het materiaal. Deze situatie is weergegeven in figuur 1.2. We zien hier de fysische betekenis van  $\lambda_L$ , de z.g.n. London-penetratiediepte. Het diamagnetische gedrag van supergeleiders is alleen perfect voor bulk samples, als de afmetingen van het sample veel groter zijn dan  $\lambda_L$ . De grootte van de penetratiediepte is ongeveer  $500 \text{ \AA}$ .



*Figuur 1.2: Het binnendringen van de magnetische flux in een supergeleider.*

Nu we ons een beetje verdiept hebben in de theorie van supergeleiders is het misschien goed aan te geven dat een supergeleidend materiaal iets anders is dan een normaal materiaal met oneidig grote elektrische geleidbaarheid. Een normaal materiaal met een oneidig grote elektrische geleidbaarheid kunnen we beschrijven door aan te nemen dat we te maken hebben met elektronen met een oneidig lange weglengte:  $l = \infty$ . In dat geval geldt:

$$\frac{d(m\vec{v})}{dt} = e\vec{E} \quad 1.13$$

en:

$$\vec{j} = ne\vec{v} \quad 1.14$$

Uit deze relaties volgt inderdaad vergelijking 1.6. De respons van een elektrongas op een elektrisch veld is echter niet-lokaal, zodat de stroom in een punt wordt bepaald door het elektrische veld gemiddeld over een gebied met straal  $l$  rond dat punt. Hieruit volgt dat alleen velden die uniform zijn over een gebied met deze grootte een volledige respons geven. De geleidbaarheid wordt alleen oneidig voor  $l \rightarrow \infty$  als het veld alle ruimte vult. Omdat we hier te maken hebben met grensgebieden tussen gebieden met een veld en gebieden zonder, kan oneindige geleidbaarheid nooit optreden, zelfs niet als de vrije weglengte van elektronen oneindig groot wordt. De daadwerkelijke oorzaak van de oneindige elektrische geleiding van supergeleiders hebben we terloops al genoemd. Bij de afleiding van vergelijking 1.4 gingen we er namelijk van uit dat de

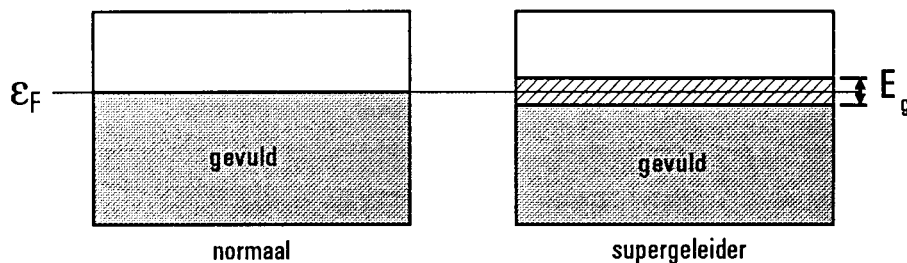
golffunctie die de elektronen beschrijft 'stijf' is. De elektronen ordenen zich op dusdanige wijze dat  $\langle \vec{p} \rangle = 0$ , ook als er een vectorpotentiaal  $\vec{A}$  aanwezig is.

### 1.1.3 De Ginzburg-Landau theorie

De Ginzburg-Landau theorie was een uitbreiding van de London-theorie. Met deze theorie is het mogelijk dat de dichtheid van supergeleidende elektronen,  $n_s$ , varieert in de ruimte. Ginzburg en Landau introduceerden een plaatsafhankelijke parameter  $\psi$ , die een maat is voor de orde in de supergeleidende fase. De ordeningsparameter is complex en kan worden beschouwd als een golffunctie voor het massamiddelpunt van de elektronparen. De golffunctie volgt uit de voorwaarde dat de vrije energie van een systeem minimaal moet zijn. De Ginzburg-Landau theorie was in eerste instantie een fenomenologische theorie, maar later is afgeleid dat de G.L.-theorie een beperkt geldige toepassing van de microscopische theorie is. De voorwaarden voor de geldigheid van de G.L.-theorie zijn: de temperatuur moet in de buurt van  $T_c$  liggen en de ruimtelijke variaties van  $\vec{A}$  mogen niet te groot zijn.

### 1.1.4 De B.C.S.-theorie

De London-theorie die we in een vorige paragraaf hebben behandeld beschrijft de twee hoofdeigenschappen van supergeleiders kwantitatief goed. Het is echter zo dat de London-penetratiediepte niet overeenkomt met de daadwerkelijke penetratiediepte. Dit komt ondermeer doordat de London-theorie geen waarde voor  $n_s$ , de dichtheid van supergeleidende elektronen, oplevert. De London-theorie is blijkbaar een te eenvoudige weergave van de werkelijkheid.



Figuur 1.3: De geleidingsband in de normale toestand en de energie-gap in het supergeleidende geval.

Er zijn nog meer grootheden die niet te berekenen zijn door gebruik te maken van de London-theorie. De belangrijkste grootheid die we missen in de London-theorie is de energie-gap  $E_g$ . In supergeleiders bestaat een energie-verschil tussen de grondtoestand en de aangeslagen toestanden. In figuur 1.3 wordt weergegeven hoe de grondtoestand van een supergeleider er uitziet in vergelijking met de normale toestand. In het normale geval kunnen we de geleidingselektronen zien als een Fermi gas van deeltjes zonder onderlinge interactie. De grondtoestand is dan de gevulde Fermi zee. Een aangeslagen toestand kan worden gevormd door een elektron een willekeurige afstand boven het Fermi-oppervlak uit te tillen. In de supergeleidende toestand is er een extra energie  $E_g$  nodig om een deeltje boven de grondtoestand uit te tillen. De grootte van de energie-gap heeft zijn maximale waarde als  $T = 0$  en gaat geleidelijk naar nul als  $T \rightarrow T_c$ .

In 1957 presenteerden Bardeen, Cooper en Schrieffer hun beroemde microscopische theorie over supergeleiding. Het belangrijkste resultaat dat volgt uit deze theorie is dat de ladingsdragers in de supergeleidende toestand elektronparen zijn. Deze paren vormen zich ten gevolge van een positieve interactie tussen de elektronen, ongeacht de zwakte van deze interactie. De interactie tussen de elektronen verloopt als volgt: elektron één heeft interactie met de ionen van het rooster en vervormt het rooster een beetje; elektron twee ziet het vervormde rooster en past zijn beweging aan om van deze vervorming gebruik te maken om zijn energie te verlagen. Het tweede elektron heeft dus interactie met het eerste elektron via het rooster.

De bewegingen van het rooster kunnen worden beschreven m.b.v. fononen. Het blijkt in de supergeleidende toestand zo te zijn dat een fonon dat geëmitteerd wordt als gevolg van de beweging van een elektron met golfvector  $\vec{k}$ , wordt geabsorbeerd als gevolg van de beweging van een elektron met golfvector  $-\vec{k}$ . Het lijkt dus alsof de elektronen wisselwerken door de uitwisseling van fononen. Het gaat dus om bewegingen van het rooster als gevolg van de afstoting tussen elektronen en de ionen van het rooster. Deze moeten niet worden verward met trillingen van het rooster t.g.v. warmtebeweging. Ook als  $T=0$  kunnen de elektronen het rooster nog laten bewegen.

Door de vorming van paren is het mogelijk om een elektronpaar aan de Fermi-zee toe te voegen terwijl de afzonderlijke kinetische energien van de twee elektronen boven het Fermi-niveau liggen. De positieve interactie tussen de elektronen zorgt ervoor dat de totale energie van het paar lager is dan de som van de Fermi-energien van de twee afzonderlijke elektronen. Hierdoor wordt het quasi-continuüm van energie-niveaus rond de Fermi-energie opgesplitst en ontstaat een energie-gap tussen de normale elektronen en de supergeleidende paren. Bij excitatie van een paar over de energie-gap ontstaan twee normale elektronen.

Het centrale gegeven in de B.C.S.-toestand is dat de één-deeltjes orbitals worden bezet in paren: als een orbital met golfvector  $\vec{k}$  en spin up bezet is, dan is het orbital met golfvector  $-\vec{k}$  en spin down ook bezet. Als  $\vec{k}_1 \uparrow$  leeg is, dan is  $-\vec{k}_1 \downarrow$  ook leeg. Deze paren heten Cooper-paren. We zien dat op deze manier altijd voldaan is aan  $\langle \vec{p} \rangle = 0$ . Cooper-paren hebben spin nul en hebben veel eigenschappen gemeen met bosonen. De paren hoeven zich niets aan te trekken van het Pauli-verbod en kunnen dezelfde golffunctie hebben. Het blijkt zelfs zo te zijn dat alle Cooper-paren in een supergeleider door dezelfde golffunctie beschreven kunnen worden. Als er geen stroom loopt hebben alle paren dezelfde fase en is de golffunctie coherent over het hele volume van de supergeleider.

## 1.2 SUPERGELEIDENDE RING

### 1.2.1 Inleiding

Ginzburg en Landau introduceerden in 1950 een plaatsafhankelijke parameter  $\psi$ , die een maat is voor de orde in de supergeleidende fase. De orderingsparameter is complex en kan worden beschouwd als een golffunctie voor supergeleidende elektronen. Deze golffunctie gaan we gebruiken om het gedrag van een supergeleidende ring in een magnetisch veld te beschrijven. Uit de voorwaarde dat de golffunctie eenduidig is als we rondgaan over de ring, volgt dat de flux door de ring gequantiseerd is.

### 1.2.2 Flux quantisatie in een supergeleidende ring

We hebben in paragraaf 1.1 gezien dat we in de supergeleidende toestand te maken hebben met elektronparen, die allen beschreven kunnen worden met één golf functie. Men zegt ook wel dat er sprake is van macroscopische quantumtoestanden. De golf functie is van de vorm:

$$\psi(\vec{r}) = \rho^{1/2}(\vec{r}) \exp(j\phi) \quad 1.15$$

Hierin wordt de dichtheid van elektronparen in een gegeven punt  $\vec{r}$  in de supergeleider gegeven door  $\rho(\vec{r})$ :

$$\rho(\vec{r}) = \psi^*(\vec{r})\psi(\vec{r}) \quad 1.16$$

Analoog aan het geval van een elektron in een magnetisch veld kunnen we de waarschijnlijkheids stroomdichtheid  $\vec{w}$  berekenen. Voor een elektron is de formule:

$$\vec{w}_{elektron} = -\frac{i\hbar}{2m}(\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*) - \frac{e\vec{A}}{m} \psi \psi^* \quad 1.17$$

Voor de waarschijnlijkheids stroomdichtheid van de elektronparen moeten we voor de massa  $2m$  invullen, twee keer de vrije elektronmassa. Voor de lading van een elektronpaar vullen we  $q$  in. Als golf functie moeten we de golf functie uit vergelijking 1.15 nemen. Dit levert:

$$\vec{w}_{elektronparen} = -\frac{i\hbar}{4m}(2\rho i \nabla \phi) - \frac{q\rho\vec{A}}{2m} = \frac{\rho}{2m}(\hbar \nabla \phi - q\vec{A}) \quad 1.18$$

Hieruit volgt voor de (microscopische) elektrische stroomdichtheid t.g.v. de elektronparen:

$$\vec{j} = q\vec{w}_{elektronparen} = \frac{\rho q}{2m}(\hbar \nabla \phi - q\vec{A}) \quad 1.19$$

Deze formule vervangt vergelijking 1.4 uit de London-theorie. Als we de rotatie nemen van deze vergelijking vinden we de tweede London-vergelijking weer terug:

$$\vec{\nabla} \times \vec{j} = -\frac{\rho q^2}{2m} \vec{B} \quad 1.20$$

Het Meissner-effect is dus ook binnen de Ginzburg-Landau theorie gemakkelijk te beschrijven.

Om een fysische betekenis te kunnen hebben moet de golf functie eenduidig zijn. Dat wil zeggen dat de fase over een gesloten kring alleen met  $2\pi n$  mag veranderen. Hierin is  $n$  een geheel getal. Voor de fase kunnen we met behulp van vergelijking 1.19 schrijven:

$$\nabla \phi = \frac{2m\vec{j}}{\rho q \hbar} + \frac{q}{\hbar} \vec{A} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \left( \frac{m\vec{j}}{2e^2 \rho} + \vec{A} \right) \quad 1.21$$

Hierin is gebruik gemaakt van:  $\Phi_0 = h/2e$  en  $q = 2e$ . De eenduidigheidseis luidt nu:

$$2\pi n = \oint \nabla\phi \cdot d\vec{l} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \left( \oint_C \vec{A} \cdot d\vec{l} + \oint_C \frac{m\vec{j} \cdot d\vec{l}}{2e^2\rho} \right) \quad 1.22$$

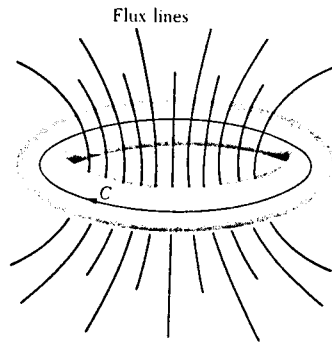
De integratieweg van de kringintegraal in het geval van een ring staat afgebeeld in figuur 1.4. Vergelijking 1.22 kan worden geschreven worden als:

$$\iint_s \vec{B} \cdot d\vec{\sigma} + \frac{m}{2e^2\rho} \oint_C \vec{j} \cdot d\vec{l} = n\Phi_0 \quad 1.23$$

Hierin is gebruik gemaakt van het theorema van Stokes en van de definitie van de vectorpotentiaal:

$$\oint_C \vec{A} \cdot d\vec{l} = \iint_s \nabla \times \vec{A} \cdot d\vec{\sigma} = \iint_s \vec{B} \cdot d\vec{\sigma} \quad 1.24$$

De grootheid in het linkerlid van vergelijking 1.23 heet fluxoid. We zien dat deze is gequantiseerd.



Figuur 1.4: Fluxlijnen door een supergeleidende ring.

Als het systeem in de supergeleidende toestand is, is  $n$  constant en tijdonafhankelijk. Als de kring  $C$  een supergeleidend gebied omsluit (d.w.z. als het supergeleidende gebied enkelvoudig samenhangend is), is de enige mogelijke keuze voor  $n$ :  $n=0$ . In dat geval beschrijft vergelijking 1.23 het Meissner-effect: de magnetische flux in een bulk supergeleider is nul, behalve in een klein gebied aan het oppervlak waar de afscherpende superstromen lopen. Met behulp van het theorema van Stokes is te zien dat in het geval dat  $n$  gelijk is aan nul vergelijking 1.23 overeenkomt met vergelijking 1.8. Als de kring een normaal gebied of een leeg gebied omsluit, zijn alle waarden voor  $n$  ( $0, 1, 2, \dots$ ) toegestaan. Wanneer het mogelijk is om de kringintegraal te nemen in een gebied ver van het oppervlak van de supergeleider, zodat de superstroom te verwaarlozen is, vinden we:

$$\Phi = \iint_s \vec{B} \cdot d\vec{\sigma} = n\Phi_0 \quad 1.25$$

Deze formule beschrijft de quantisatie van de flux door een supergeleidende ring. Het gaat hier dus om de flux die door het gat van de ring gaat, zoals weergegeven in figuur 1.4. Door de supergeleider zelf gaat geen flux. (Behalve in een klein gebied aan het oppervlak, maar als de

dikte van de ring veel groter is dan de penetratiediepte is deze flux te verwaarlozen.)

### 1.2.3 Gedrag van een supergeleidende ring in een aangelegd veld

In de vorige paragraaf zagen we dat de flux door een supergeleidende ring gequantiseerd is. In deze paragraaf bekijken we wat voor gevolgen deze eigenschap heeft voor het gedrag van een supergeleidende ring waardoor we een magneetveld aanleggen. Hiertoe bekijken we de vrije energie van de ring. Als we deze uitzetten tegen de aangelegde flux  $\Phi_e$ , zoals in figuur 1.5, zien we verschillende takken voor de verschillende toestanden waarin de ring zich kan bevinden. We nemen aan dat de ring in eerste instantie een temperatuur heeft onder  $T_c$  en dat de flux door de ring nul is. Als er een extern veld  $B_e$  wordt aangelegd, begint er een superstroom  $i$  door het oppervlak van de ring te lopen om te compenseren voor de flux  $\Phi_e$  door de ring, zoals wordt geëist door de flux-quantisatie voorwaarde. Als de inductie van de ring  $L$  is, kunnen we voor totale flux schrijven:

$$\Phi = n\Phi_0 = \Phi_e + Li \quad 1.26$$

Voor de totale flux door de ring gebruiken we de notatie  $\Phi$ . De flux door de ring ten gevolge van een extern aangelegd magneetveld  $B_e$  noemen we  $\Phi_e$ . De superstroom die gaat lopen om ervoor te zorgen dat aan de flux-quantisatie eis wordt voldaan heet  $i$ .

Uit formule 1.26 volgt voor de superstroom:

$$i = \frac{1}{L} (\Phi - \Phi_e) = \frac{1}{L} (n\Phi_0 - \Phi_e) \quad 1.27$$

De belangrijkste bijdragen aan de vrije energie van de ring zijn de kinetische energie van de elektronparen en de magnetische energie. Voor de magnetische energie geldt:

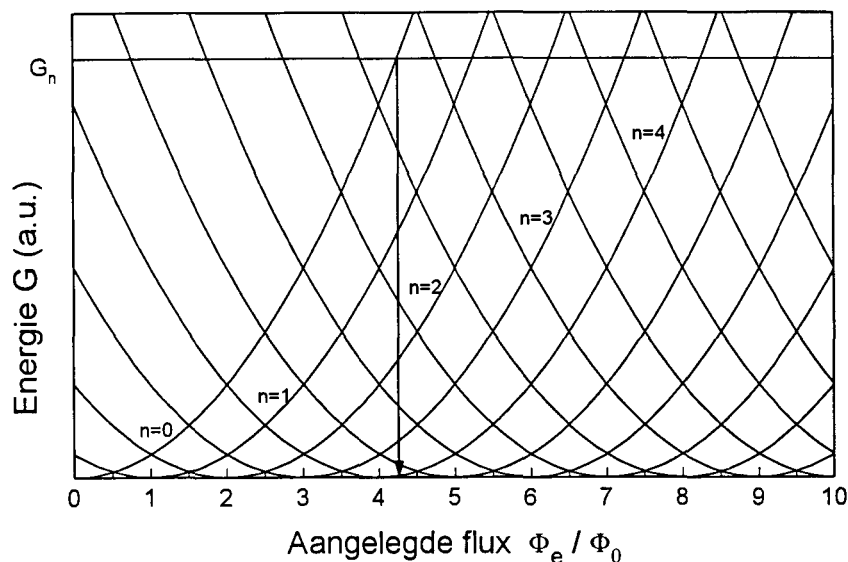
$$E_{magn} = \frac{1}{2} L i^2 \quad 1.28$$

Ook de kinetische energie van de elektronparen is evenredig met het kwadraat van de superstroom, zodat we voor de vrije energie van de supergeleidende ring vinden:

$$G\left(\frac{\Phi_e}{\Phi_0}\right) = C i^2 = G_0 \left(n - \frac{\Phi_e}{\Phi_0}\right)^2 \quad 1.29$$

Deze functie staat weergegeven in figuur 1.5. Elke tak hoort bij een verschillende waarde van  $n\Phi_0$ , de flux door de ring. Als het uitwendige veld  $B_e$  groter wordt, verandert de inwendige flux niet. De vrije energie neemt toe langs een  $n$ =constant kromme ( $n=0$  in ons geval). Als de vrije energie van de ring gelijk is aan de vrije energie in de normale toestand,  $G_N$ , gaat de ring over in de normale toestand. Dit komt omdat de kritieke temperatuur lager wordt in een aangelegd veld. Het veld waarbij dit gebeurt hoeft niet gelijk te zijn aan het kritieke veld van een bulk supergeleider. De flux door de ring wordt dan gelijk aan de aangelegde flux, omdat nu de flux niet meer gequantiseerd hoeft te zijn. Door de ring vervolgens af te koelen tot onder de kritieke temperatuur  $T_c$  kan een overgang worden gemaakt naar een toestand met een andere  $n$ . Als we een ring afkoelen tot onder de kritieke temperatuur  $T_c$  terwijl er een flux door de ring gaat, komt de ring de

toestand met de laagste energie. Dit is de toestand met de laagste stroom. In figuur 1.5 is dat de  $n=4$  toestand.



Figuur 1.5: De vrije energie van een supergeleidende ring als functie van de aangelegde flux.

## 1.3 JOSEPHSON-JUNCTIES

### 1.3.1 Inleiding

In deze paragraaf wordt het gedrag bekeken van een Josephson-junctie. Dat is een onderbreking tussen twee supergeleiders, zodat ze zwak gekoppeld zijn. Een junctie kan bijvoorbeeld worden gemaakt door een dunne oxidelaag tussen de supergeleiders, een supergeleidend puntcontact of een laagje normaal materiaal tussen de supergeleiders. Josephson voorspelde dat een gelijkstroom door een junctie kan tunnelen zonder aangelegd potentiaalverschil. Deze stroom wordt beschreven door de Josephson-vergelijkingen. Deze vergelijkingen worden in deze paragraaf afgeleid.

### 1.3.2 Josephson-vergelijkingen

We gaan een structuur bekijken als in figuur 1.6. We beschrijven de supergeleiders links en rechts van de junctie met golf functies  $\psi_L$  en  $\psi_R$ , zodat voor de paren dichtheid links en rechts geldt:

$$\begin{aligned} |\psi_L|^2 &= \rho_L \\ |\psi_R|^2 &= \rho_R \end{aligned} \tag{1.30}$$

We gaan er voor het gemak van uit dat beide supergeleiders identiek zijn en dat er geen potenti-



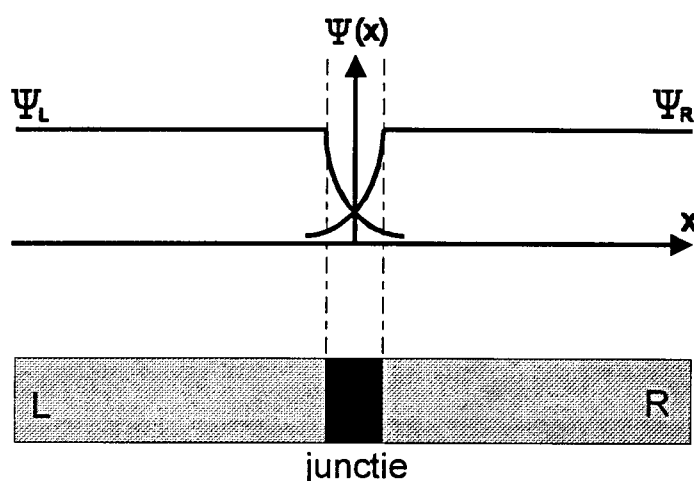
aalverschil is over de junctie. Als we de tijdfhankelijke Schrödingervergelijking,

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = H \Psi \quad 1.31$$

toepassen vinden we voor de twee golffuncties:

$$i\hbar \frac{\partial \psi_L}{\partial t} = \hbar T \psi_R; \quad i\hbar \frac{\partial \psi_R}{\partial t} = \hbar T \psi_L \quad 1.32$$

Hierin representeert  $\hbar T$  het effect van de elektronpaar koppeling over de junctie. Het is een maat voor het 'doorleken' van  $\psi_L$  in het gebied rechts van de junctie en  $\psi_R$  in het gebied links van de junctie. Als de barrière groot is, is  $T$  gelijk aan nul en is er geen koppeling.



Figuur 1.6: Schematische weergave van een Josephson-junctie

Vullen we de golffuncties van vergelijking 1.15 in in vergelijking 1.32, dan vinden we:

$$\frac{\partial \psi_L}{\partial t} = \frac{1}{2} \rho_L^{-1/2} \frac{\partial \rho_L}{\partial t} \exp(j\phi_L) = -iT \psi_R; \quad 1.33$$

$$\frac{\partial \psi_R}{\partial t} = \frac{1}{2} \rho_R^{-1/2} \frac{\partial \rho_R}{\partial t} \exp(j\phi_R) = -iT \psi_L$$

Als we in elke vergelijking de reële en imaginaire delen aan elkaar gelijk stellen, krijgen we:

$$\frac{\partial \rho_L}{\partial t} = 2T(\rho_L \rho_R)^{1/2} \sin \phi; \quad \frac{\partial \rho_R}{\partial t} = -2T(\rho_L \rho_R)^{1/2} \sin \phi;$$

$$\frac{\partial \phi_L}{\partial t} = -T \left( \frac{\rho_R}{\rho_L} \right)^{1/2} \cos \phi; \quad \frac{\partial \phi_R}{\partial t} = -T \left( \frac{\rho_L}{\rho_R} \right)^{1/2} \cos \phi. \quad 1.34$$

Hierin is:

$$\phi = \phi_L - \phi_R \quad 1.35$$

De parenstroomdichtheid door de junctie  $J$  wordt gegeven door:

$$J \equiv \frac{\partial \rho_L}{\partial t} = -\frac{\partial \rho_R}{\partial t} \quad 1.36$$

Uit vergelijking 1.34 volgt dan:

$$J = 2T(\rho_L \rho_R)^{1/2} \sin \phi \quad 1.37$$

Wanneer we aannemen dat  $\rho_L = \rho_R = \rho_1$ , wat overeenkomt met de al eerder gemaakte aanname dat we te maken hebben met identieke supergeleiders, wordt vergelijking 1.37:

$$J = J_1 \sin \phi; \quad J_1 = 2T\rho_1 \quad 1.38$$

We zien dat er een gelijkstroom door de junctie loopt, zonder dat er een spanning over de junctie wordt aangelegd. (Er is natuurlijk wel een stroombron nodig om de spanning over de junctie op nul te houden.) De grootte van de stroom is afhankelijk van het faseverschil  $\phi$ . De maximale stroom die zonder spanningsverschil door de junctie kan stromen is  $J_1$ .

### 1.3.3 Ac Josephson-effect

Tot slot van deze paragraaf kijken we naar het gedrag van de stroom door de junctie als er wel een spanning over de junctie aanwezig is. Als er een spanning  $V$  over de junctie staat, ondervindt een elektronpaar een potentieel energieverval  $qV$  als het de junctie passeert. Hierin is  $q = 2e$ . We kunnen zeggen dat een paar aan de ene kant een potentiële energie  $-eV$  heeft en een paar aan de andere kant  $+eV$ . De bewegingsvergelijkingen 1.32 worden dan:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_L}{\partial t} = \hbar T \Psi_R - eV \Psi_L; \quad i\hbar \frac{\partial \Psi_R}{\partial t} = \hbar T \Psi_L + eV \Psi_R \quad 1.39$$

Als we weer aannemen dat  $\rho_R = \rho_L$  vinden we voor het faseverschil over de junctie op dezelfde manier als in paragraaf 1.3.2:

$$\frac{\partial(\phi_L - \phi_R)}{\partial t} = \frac{\partial \phi}{\partial t} = -\frac{2eV}{\hbar} \quad 1.40$$

Vergelijking 1.36 voor de stroom door de junctie moet nu worden vervangen door:

$$J = J_1 \sin\left(\phi(0) - \frac{2eVt}{\hbar}\right) \quad 1.41$$

We zien dat de stroom oscilleert met frequentie:

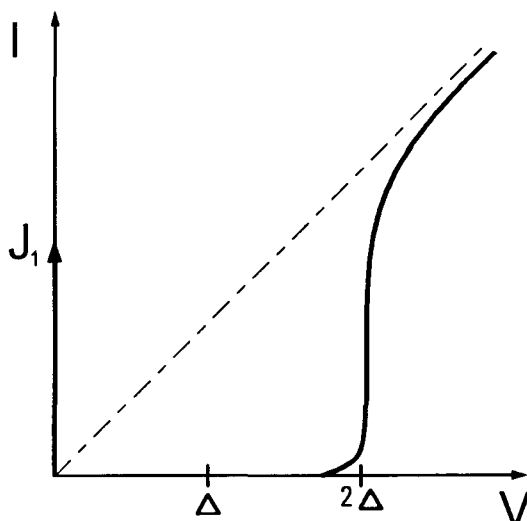
$$\omega = \frac{2eV}{\hbar} \quad 1.42$$

Deze oscillaties gaan meestal gepaard met de uitzending van elektromagnetische golven met dezelfde frequentie.

We kunnen nu het gedrag van de Josephson-junctie beschrijven aan de hand van de I-V-curve in figuur 1.7. We zien de stroom  $J_1$  die kan lopen als er geen spanning over de junctie staat. Als er wel een spanning over de junctie staat, gaat er pas een gelijkstroom lopen als deze spanning even groot is als:

$$\frac{E_g}{e} = 2\Delta \quad 1.43$$

De elektronparen hebben dan genoeg energie om de energie-gap te overbruggen. Ze splitsen zich dan in twee normale elektronen. Deze elektronen die ontstaan door het splitsen van een paar worden ook wel quasi-deeltjes genoemd. Zolang de spanning kleiner is als  $2\Delta$  hebben we te maken met de oscillerende stroom beschreven in vergelijking 1.41. Deze stroom levert geen bijdrage aan de dc-stroom die uitstaat in de figuur.



Figuur 1.7: spannings-stroom karakteristiek van een Josephson-junctie

## 1.4 SUPERGELEIDENDE RING MET JUNCTIE

### 1.4.1 Inleiding

In deze paragraaf worden de twee onderwerpen van de twee vorige hoofdstukken samengevoegd: in een supergeleidende ring wordt een Josephson-junctie aangebracht.

### 1.4.2 Parenstroom als functie van de flux

Ook als de supergeleidende ring een junctie bevat, moet de fase van de golf functie aan vergelijking 1.22 voldoen. De aanname dat ter plaatse van de integratiekring geen stroom loopt,

zodat de tweede integraal in vergelijking 1.22 gelijk aan nul is, gaat niet meer op in de junctie. Daarom vinden we in dit geval een ander resultaat als vergelijking 1.25:

$$2\pi n = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} + \phi_J \quad 1.44$$

De eerste term in het rechterlid is het faseverschil over de ring dat ontstaat ten gevolge van de flux door de ring. Er bestaat een relatie tussen de flux door de ring en het faseverschil dat hierdoor ontstaat:

$$\phi = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} \quad 1.45$$

De tweede term in vergelijking 1.43,  $\phi_J$ , is het faseverschil over de junctie dat ontstaat als een gevolg van de parenstromen door de junctie. Met vergelijking 1.22 vinden we:

$$\phi_J = \frac{2\pi}{\Phi_0} \frac{m}{2e^2 \rho} \int_1^2 \vec{j} \cdot d\vec{l} \quad 1.46$$

In deze vergelijking wordt geïntegreerd over de dikte van junctie.

Als een extern veld wordt aangelegd, ontstaat ten gevolge hiervan een flux  $\Phi_e$  door de ring. Het volgt uit vergelijking 1.44 dat de flux door de ring nu niet meer gelijk is aan  $\Phi = n\Phi_0$ . Vergelijking 1.44 legt echter wel een andere voorwaarde op aan de flux, waardoor er weer een superstroom  $i$  gaat lopen die de aangelegde flux probeert af te schermen. Als we weer de inductie  $L$  van de ring gebruiken, kunnen we voor de flux door de ring weer schrijven:

$$\Phi = \Phi_e + Li = n\Phi_0 \quad 1.47$$

Het ongelijkteken is bedoeld om aan te geven dat de flux kwantisatie-eis zoals we die hebben gezien in paragraaf 1.2 (vergelijking 1.25) nu niet meer geldt. Het systeem voldoet nu aan de algemenere voorwaarde van fluxoid-kwantisatie. De circulerende superstroom wordt bepaald door de junctie. Met vergelijkingen 1.37 en 1.45 vinden we voor de stroom:

$$i = -I_1 \sin 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} \quad 1.48$$

Hier is een min-teken ingevoerd, want de stroom werkt de uitwendige flux tegen. We hebben hier de maximale stroom door de junctie  $I_1$  genoemd. Dit is de maximale stroomdichtheid uit vergelijking 1.37 geïntegreerd over het oppervlak van de doorsnede van de ring.

### 1.4.3 Gedrag van een supergeleidende ring met junctie in aangelegd veld

Als er een externe flux wordt aangelegd door de ring, vinden we met vergelijkingen 1.47 en 1.48 voor de totale flux in de ring:

$$\Phi = \Phi_e - LI_1 \sin\left(2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \quad 1.49$$

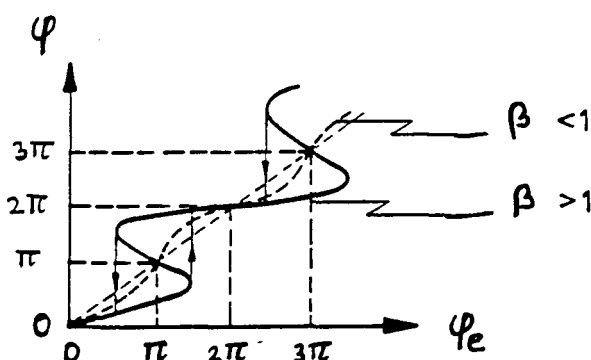
We kunnen deze vergelijking met 1.45 ook schrijven als een functie van de fasebijdragen over de ring:

$$\phi = \phi_e - 2\pi \frac{LI_1}{\Phi_0} \sin\phi = \phi_e - \beta \sin\phi \quad 1.50$$

Hierin hebben we een nieuwe parameter  $\beta$  gedefinieerd:

$$\beta = 2\pi \frac{LI_1}{\Phi_0} \quad 1.51$$

Dit is een belangrijke parameter van het systeem van een ring met een junctie, zoals het duidelijkst blijkt in vergelijking 1.50. Als  $\beta < 1$  is het verband tussen  $\phi$  en  $\phi_e$  (en ook  $\Phi$  en  $\Phi_e$ ) bijna lineair. In dit geval is de maximale amplitude van de superstroom  $I_1$  te klein om een faseverschil over de junctie te veroorzaken vergelijkbaar van grootte met  $2\pi$ . Dat wil zeggen dat er geen fluxquant in de ring wordt veroorzaakt door de superstroom. Met andere woorden: de superstroom is niet in staat één fluxquant buiten de ring te houden. Als  $\beta$  groter wordt, wordt het verband tussen  $\phi$  en  $\phi_e$  steeds meer non-lineair, zoals te zien in figuur 1.8. Als  $\beta = 1$  wordt de functie meerwaardig in de punten  $\phi_e = \pi + 2\pi n$ . Als  $\beta$  nog groter wordt ontstaan er grotere gebieden waar de functie meerwaardig is, totdat de functie overal meerwaardig is.

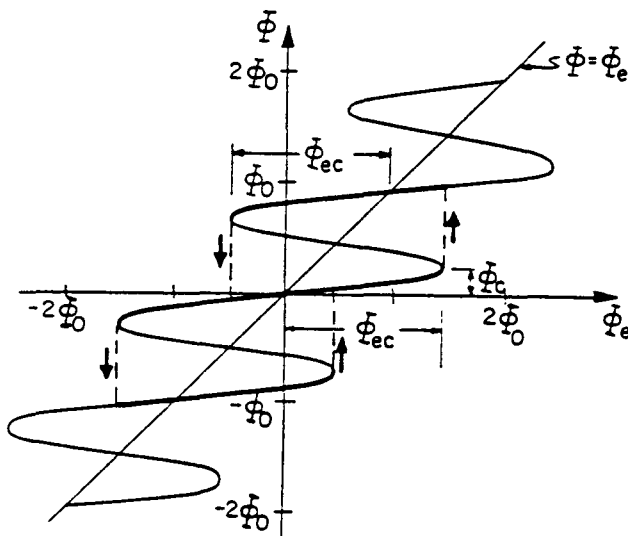


Figuur 1.8: Totale fase  $\phi$  als functie van  $\phi_e$ . De verschillende curves horen bij verschillende waarden van  $\beta$ .

Het gedrag van  $\Phi$  als functie van  $\Phi_e$  staat weergegeven in figuur 1.9 voor  $\beta = 2,5\pi$ . De stukken met positieve helling zijn stabiel, terwijl de stukken met negatieve helling energetisch instabiel zijn. Stel dat de externe flux  $\Phi_e$  langzaam wordt verhoogd vanuit nul. De totale flux  $\Phi$  zal minder snel toenemen dan  $\Phi_e$ , omdat de stroom  $i$  de externe flux gedeeltelijk afschermt. Als de ring geen junctie zou bevatten zou de totale flux nul blijven, zoals we gezien hebben in paragraaf 1.2. Als de stroom  $i$  de waarde  $I_1$  bereikt, bij  $\Phi_e = \Phi_{ec}$  en  $\Phi = \Phi_c$ , staat er tijdelijk een spanning over de junctie, en gaat de ring over van de  $n = 0$  naar de  $n = 1$  quantumtoestand. Als  $\Phi_e$  verder wordt verhoogd, zal de ring overgangen maken naar de  $n = 2, 3, \dots$  toestanden. Het is nu niet meer nodig om de hele ring normaal te laten worden voordat een overgang naar een

andere toestand gemaakt kan worden, zoals in het vorige hoofdstuk. De overgangen zijn nu een gevolg van de junctie. De junctie 'schakelt' tussen supergeleidend en normaal gedrag, zodat overgangen gemaakt kunnen worden terwijl de rest van de ring supergeleidend blijft.

Stel nu dat  $\Phi_e$  kleiner wordt vanaf een waarde net boven  $\Phi_{ec}$ . De ring blijft dan in de  $n = 1$  toestand tot  $\Phi_e = \Phi_0 - \Phi_{ec}$ . Op dat punt wordt  $i$  weer gelijk aan de kritieke waarde voor de stroom  $I_1$  en de ring maakt een overgang naar de  $n = 0$  toestand. Op deze manier zijn één of meerdere hystereselussen te doorlopen in het  $\Phi - \Phi_e$ -vlak.



Figuur 1.9: Omsloten flux  $\Phi$  als functie van de aangelegde flux  $\Phi_e$  voor  $\beta = 2,5$

## 1.5 RING GEKOPPELD AAN TANKCIRCUIT

### 1.5.1 Inleiding

Het gedrag van een supergeleidende ring met een junctie zoals besproken in het vorige hoofdstuk kan worden gebruikt om een instrument te maken dat een spanning levert die evenredig is met een aangelegde dc-flux door de ring. Een manier om dit te doen is door een tankcircuit inductief aan de supergeleidende ring te koppelen. Zo ontstaat een z.g.n. rf squid. In dit hoofdstuk wordt het gedrag van de supergeleidende ring met junctie beschreven onder invloed van een drijvende flux geïnduceerd door een tankcircuit.

### 1.5.2 Biasing d.m.v. drijvende rf-flux

De supergeleidende ring wordt inductief gekoppeld aan de spoel van een LC resonantie circuit, zoals in figuur 1.10. Het tankcircuit wordt in resonantie gebracht door een rf stroom:

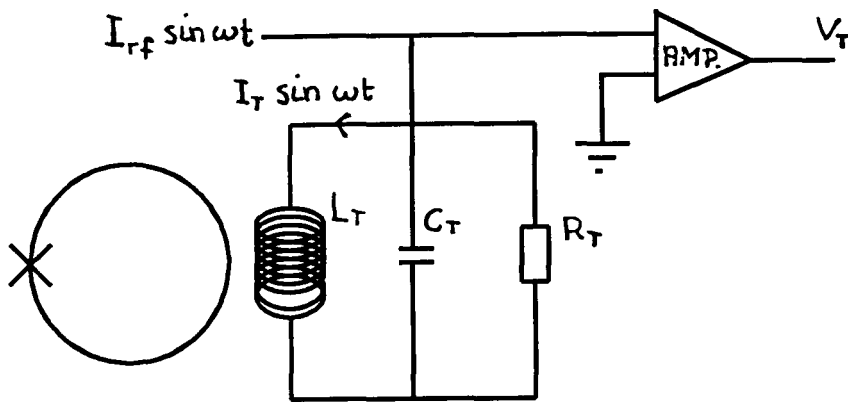
$$i_{rf} = I_{rf} \sin \omega t$$

De spanning over het tankcircuit wordt versterkt door een versterker met een hoge ingangsimpedantie. Stel dat de uitwendige flux aanvankelijk nul is:  $\Phi_e = 0$ . Als de amplitude van de drijvende stroom klein is, is de piek van de flux die in de ring wordt gekoppeld kleiner dan  $\Phi_{ec}$ :

$$\Phi_{e, \text{piek}} = MI_T = QMI_{rf} < \Phi_{ec} \tag{1.53}$$

Hierin is:

$$Q = \frac{R_T}{\omega L_T}, \quad M^2 = K^2 LL_T \tag{1.54}$$



Figuur 1.10: Squidring inductief gekoppeld aan een tank-circuit

$Q$  is de kwaliteitsfactor van het resonatiecircuit,  $M$  is de wederkerige inductie tussen de spoel en de supergeleidende ring en  $I_T$  is de amplitude van de stroom in de spoel van het tankcircuit.  $K$  is de constante van wederkerige inductie. De amplitude van de spanning over het tankcircuit,  $V_T$ , is in eerste instantie een lineaire functie van  $I_{rf}$ , zoals te zien is in figuur 1.11. Als de drijvende stroom wordt vergroot, zal de piek van de flux gelijk worden aan  $\Phi_{ec}$  als:

$$I_T = \frac{\Phi_{ec}}{M} \tag{1.55}$$

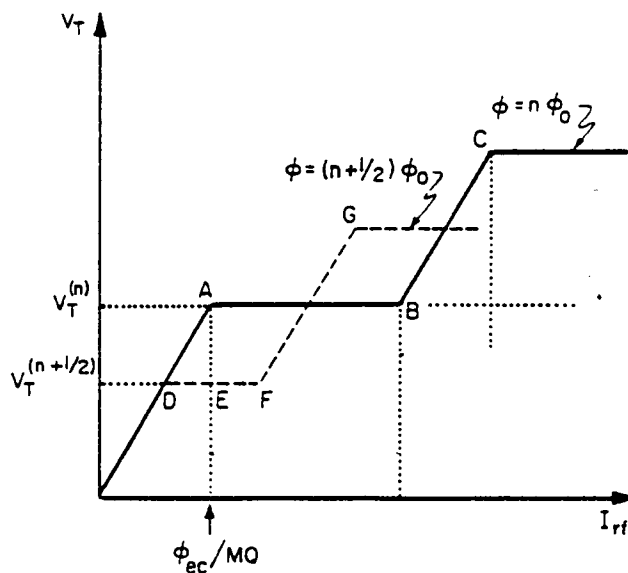
Of:

$$I_{rf} = \frac{\Phi_{ec}}{MQ} = I_A \tag{1.56}$$

Dit komt overeen met punt A in figuur 1.11. De bijbehorende spanning over het tankcircuit is:

$$V_T = V_A = \frac{\omega L_T \Phi_{ec}}{M} \tag{1.57}$$

In dit punt maakt de ring een overgang naar de  $n=1$  of de  $n=-1$  toestand, afhankelijk van de richting van de rf-flux. Later in de rf-cyclus keert de ring weer terug naar de  $n=0$  toestand, omdat de amplitude van de rf-flux die nodig is voor deze overgang kleiner is, nl.  $\Phi_{ec} - \Phi_0$  zoals te zien in figuur 1.9. Als de ring een hysteresis lus doorloopt, wordt een energie  $\Delta E$  gedissipeerd, gelijk aan het oppervlak van de lus in het  $\Phi_e - \Phi$ -vlak gedeeld door  $L$ . Deze energie wordt geleverd door de tankcircuit. Door dit energieverlies zal de amplitude van de rf-flux kleiner worden dan de kritieke flux,  $\Phi_{ec}$ , zodat in het tweede deel van de rf-cyclus geen overgang plaats vindt. Het tankcircuit heeft vele cycli nodig om weer genoeg energie op te bouwen voor een nieuwe overgang.



Figuur 1.11: Amplitude van de spanning over het RF-circuit,  $V_T$ , als functie van de amplitude van de drijvende stroom  $I_{rf}$ .

Als  $I_{rf}$  nu wordt vergroot, wordt het traject AB doorlopen in figuur 1.11. Als de ring een overgang maakt, wordt een energie  $\Delta E$  onttrokken aan het tankcircuit. Hierdoor worden de spanning over het tankcircuit  $V_T$  en de stroom door de spoel  $I_T$  iets kleiner. In de daaropvolgende rf-cycli bouwt het tankcircuit weer energie op, zodat  $V_T$  en  $I_T$  toenemen. Als de stroom door de spoel zo groot is dat de rf-flux die in de ring wordt gekoppeld even groot is als de kritieke flux  $\Phi_{ec}$ , maakt de ring weer een overgang. De energie die tijdens het doorlopen van een hysteresis lus aan het tankcircuit wordt onttrokken is erg klein. Hierdoor zijn de veranderingen van de spanning over het tankcircuit die daarvan het gevolg zijn niet te zien in figuur 1.11. De aangelegde rf-flux en de overgangen van de ring die daar het gevolg van zijn zorgen er op deze manier dus voor dat de spanning over het tankcircuit (zo goed als) constant is. Daarom wordt de rf-flux ook wel de biasflux genoemd

Als  $I_{rf}$  verder wordt verhoogd, gaat de spanning weer rechtevenredig met de amplitude van de rf-stroom toenemen. In C vinden overgangen plaats van de  $n = \pm 1$  naar de  $n = \pm 2$  toestanden. De rf-flux die in de ring wordt gekoppeld is  $\Phi_{ec}$  in B en  $\Phi_{ec} + \Phi_0$  in C. Op dezelfde manier ontstaan meer vlakke stukken en hellingen als  $I_{rf}$  verder wordt verhoogd.

Tot nu toe zijn we ervan uitgegaan dat de uitwendige dc-flux door de ring nul is:  $\Phi_e = 0$ . Het bovenstaande verhaal geldt ook als de uitwendige flux een geheel aantal maal het fluxquant is. De getrokken lijn in figuur 1.11 beschrijft het gedrag van ons systeem als voor de externe dc-flux



geldt:  $\Phi_e = n\Phi_0$ .

Als we nu een positieve externe flux  $\Phi_e = \frac{1}{2}\Phi_0$  aanleggen door de ring, kunnen we ons dat voorstellen als het verschuiven van de hysteresekromme in figuur 1.9 met  $\frac{1}{2}\Phi_0$  naar links. Een overgang kan dus plaatsvinden op de positieve piek van de rf-flux als deze  $\frac{1}{2}\Phi_0$  gelijk is aan:  $(\Phi_{ec} - \frac{1}{2}\Phi_0)$ . Op de negatieve piek is de vereiste flux:  $-(\Phi_{ec} + \frac{1}{2}\Phi_0)$ . Als  $I_{rf}$  vanaf nul toeneemt, vindt de eerste overgang plaats in D in figuur 1.11. De spanning over het tankcircuit is dan:

$$V_T = V_D = \frac{\omega L_T (\Phi_{ec} - \frac{1}{2}\Phi_0)}{M} \quad 1.58$$

Als  $I_{rf}$  verder wordt vergroot langs DF, wordt maar één hysteresekring doorlopen, horend bij de  $n=0$  naar  $n=1$  overgang. Bij verdere vergroting van de rf-stroom, neemt  $V_T$  toe naar G. In G beginnen de overgangen van de  $n=0$  naar de  $n=-1$  toestand en van de  $n=1$  naar de  $n=2$  toestand. Bovenstaand verhaal voor een uitwendige dc-flux gelijk aan een half fluxquant geldt ook als:  $\Phi_e = (n+1/2)\Phi_0$ . In dat geval wordt het gedrag beschreven door de gestippelde lijn in figuur 1.11. De lijnen voor andere waarden van de uitwendige dc-flux liggen tussen de doorgetrokken en de gestippelde lijn in. De waarde voor  $I_{rf}$  wordt nu zo ingesteld dat de lijnen voor elke externe dc-flux  $\Phi_e$  op het eerste horizontale vlak lopen. Dat wil zeggen:

$$I_{rf,A} < I_{rf} < I_{rf,F} \quad 1.59$$

Als de externe dc-flux nu varieert van 0 naar  $1/2\Phi_0$ , verloopt de amplitude van de spanning van  $V_A$  naar  $V_D$ . Wordt de externe dc-flux verder vergroot naar  $\Phi_0$ , dan gaat  $V_T$  van de waarde  $V_D$  weer naar de waarde  $V_A$ . De amplitude van de rf-spanning over het tankcircuit varieert dus periodiek als functie van de aangelegde dc-flux, met periode  $\Phi_0$ . De modulatie amplitude vinden we met behulp van formule 1.57 en 1.58:

$$\Delta V_T = V_A - V_D = \frac{\omega L_T \Phi_0}{2M} \quad 1.60$$

Als de aangelegde flux verandert met  $\delta\Phi_e$ , verandert de spanning  $V_T$  met:

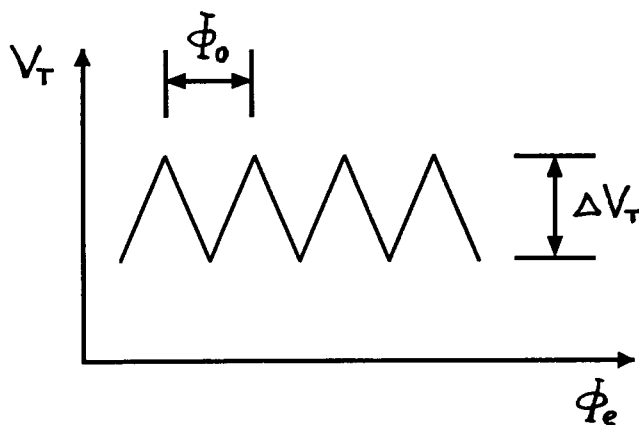
$$\delta V_T = \frac{\omega L_T \delta\Phi_e}{M} \quad 1.61$$

In figuur 1.12 zien we hoe de spanning over het tankcircuit periodiek verloopt als functie van de externe dc-flux  $\Phi_e$ .

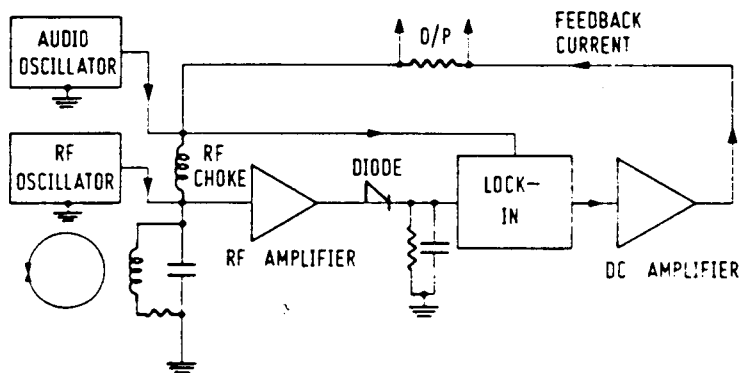
We zien een rechtevenredig verband tussen de te meten flux,  $\Phi_e$ , en de amplitude van de rf-spanning over het circuit,  $V_T$ . Dit levert in principe een methode om de flux te bepalen. Er zijn echter nog wat problemen. Het belangrijkste probleem is dat het verband tussen de spanning en de externe dc-flux niet meer eenduidig is voor een externe dc-flux groter dan  $1/2\Phi_0$ . Dit probleem wordt opgelost door de rf-flux te moduleren met behulp van een flux met amplitude kleiner dan  $1/2\Phi_0$  en een frequentie in de orde grootte van 100 kHz. Dit modulatiesignaal wordt geleverd door een audio-oscillator (zie figuur 1.13). De lock-in versterker geeft een uitgangssignaal dat evenredig is met de amplitude van het signaal met frequentie 100 kHz. Dit uitgangssignaal wordt met tegengesteld teken teruggevoerd in de SQUID-ring. In figuur 1.13 zien we het schema van

een rf-squid met een feed-back systeem.

Het feed-back systeem houdt de totale flux door de squidring in de buurt van  $n\Phi_0$ . Als de externe dc-flux verandert met  $\delta\Phi_e$ , wordt er een stroom teruggevoerd die een tegengestelde flux  $-\delta\Phi_e$  produceert. De flux door de squid-ring blijft dus op een constante waarde, terwijl de grootte van de feed-back stroom evenredig is met de verandering van  $\Phi_e$ . In de feedback-kring is een kleine weerstand opgenomen. De spanning over deze weerstand is het uitgangssignaal van het systeem.



Figuur 1.12: Verband tussen de spanning over het tankcircuit,  $V_T$ , en de externe dc-flux  $\Phi_e$ .



Figuur 1.13: Schematische weergave van een rf-squid met feed-back systeem.

## HOOFDSTUK 2: DE OPSTELLING

De in het vorige hoofdstuk beschreven SQUID vormt het hart van het meetgedeelte van de opstelling. Verder bevat de opstelling onder andere componenten die het mogelijk maken om een magnetisch veld aan te leggen, de temperatuur te regelen en om magnetisatiemetingen volledig automatisch te laten verlopen<sup>9</sup>. Als we kijken naar de verschillende functies die in de opstelling zijn samengebracht, kunnen we de volgende indeling maken:

- 1) Temperatuurregeling,
- 2) Veldregeling,
- 3) SQUID en oppikspoelenstelsel,
- 4) Computer met besturingsprogramma,
- 5) Sample bevestiging en Sample Transport Mechanisme.

Deze functies worden in dit hoofdstuk beschreven. Eerst bespreek ik de opbouw van de opstelling.

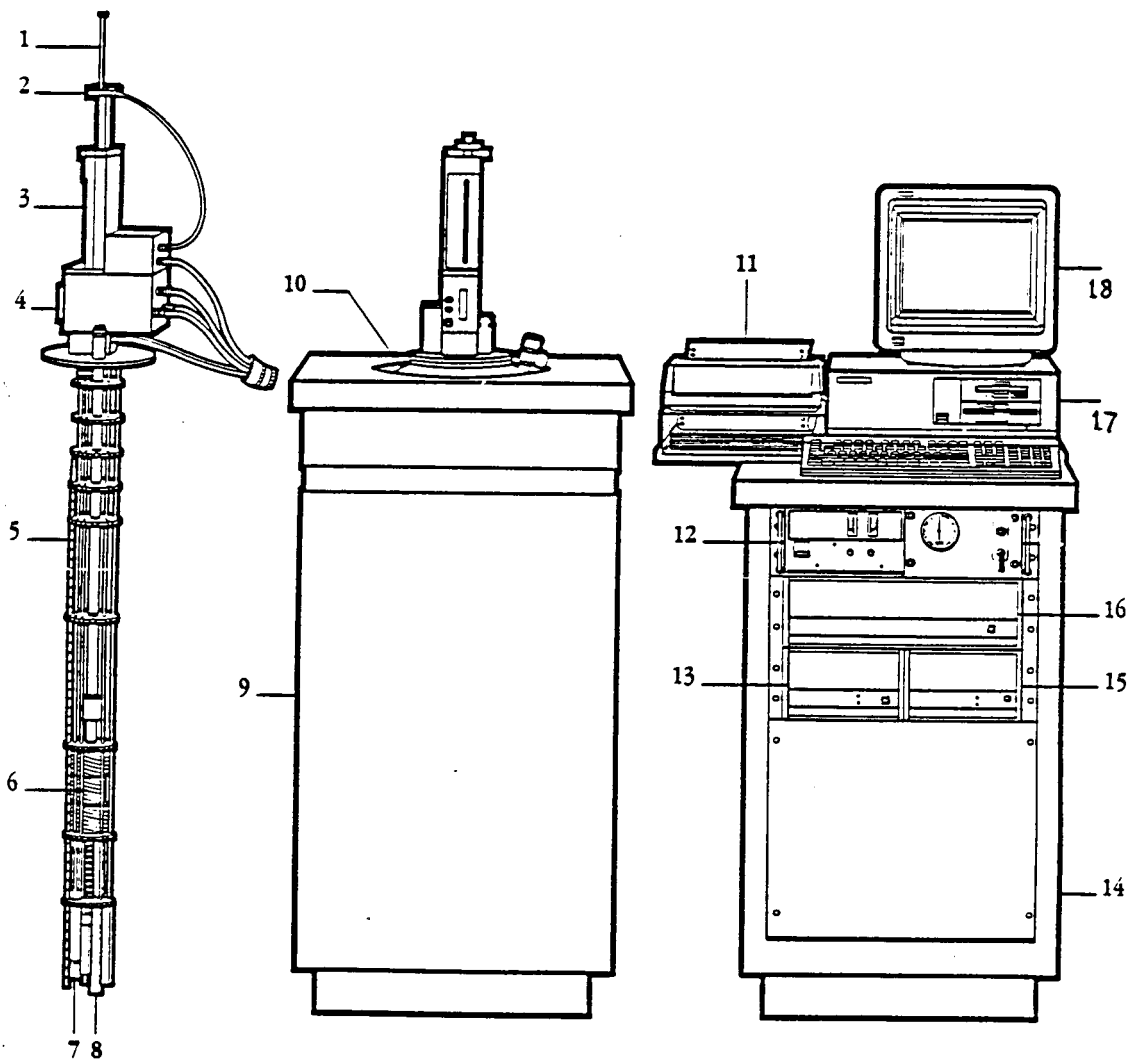
### 2.1 OPBOUW VAN DE OPSTELLING

In figuur 2.1 staat de opstelling afgebeeld. We kunnen globaal een verdeling maken in drie delen:

- 1) Een computer waarop de besturingsprogramma's zijn geïnstalleerd. Deze programma's zorgen voor de communicatie tussen de gebruiker en de opstelling. Er kunnen commando's worden gegeven aan de regelapparatuur en de toestand van de opstelling is op de monitor te controleren. Ook kunnen meetprogramma's worden geprogrammeerd die vervolgens automatisch worden uitgevoerd.
- 2) Een kast met regelapparatuur die de opdrachten van het besturingsprogramma uitvoert. In deze kast bevinden zich o.a. de voeding voor de superspoel, een pomp en twee regelaars. De pomp wordt gebruikt voor een aantal functies: het pompen van heliumgas tijdens het koelen van de sampleruimte, het regelen van de druk in de sampleruimte en het afpompen van de vacuümsluis. Eén van de twee regelaars, de model 1802 digital r/g bridge, speelt een belangrijke rol bij de temperatuurregeling. De andere regelaar, de model 1822 MPMS controller, is voor de overige functies, zoals het instellen van het magnetische veld, het uitlezen van het heliumniveau in de cryostaat en het uitvoeren van de metingen.
- 3) Een cryostaat met daarin de meetprobe. De cryostaat zorgt voor de cryogene omgeving die nodig is voor de drie belangrijkste onderdelen van de meetprobe: de temperatuurregeling, desupergeleidende spoel en de SQUID met zijn oppikspoelenstelsel. Boven aan de meetprobe bevindt zich het Sample Transport Mechanisme dat het sample stapsgewijs door de oppikspoelen beweegt. Verder is er nog de vacuümsluis waardoor de samples in de sampleruimte kunnen worden gebracht, zonder dat de sampleruimte in contact komt met de buitenlucht.

Onderdelen van de opstelling:

- |                                |                                   |
|--------------------------------|-----------------------------------|
| 1. Sample stok                 | 10. Cryostaat                     |
| 2. Sample Transport Mechanisme | 11. Printer                       |
| 3. Vacuümsluis                 | 12. Voeding supergeleidende spoel |
| 4. Bediening vacuümsluis       | 13. Model 1802 digital r/g bridge |
| 5. Helium niveau meter         | 14. Regelkast                     |
| 6. Supergeleidende spoel       | 15. Spanningsverdeling            |
| 7. Flow impedantie             | 16. Model 1822 MPMS controler     |
| 8. SQUID capsule               | 17. Computer                      |
| 9. Kast om cryostaat           | 18. Monitor                       |



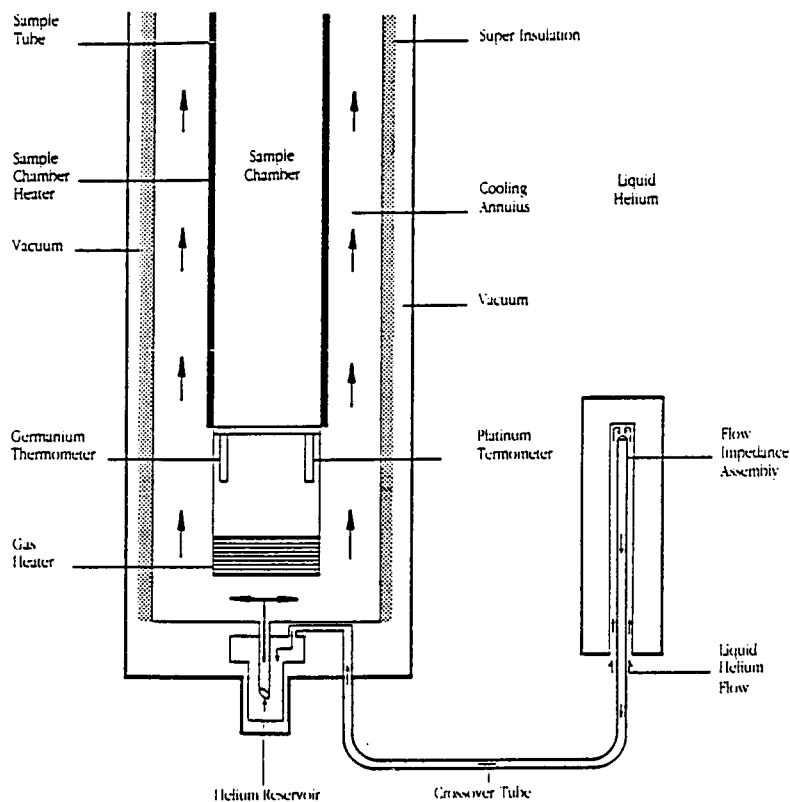
Figuur 2.1: De opstelling

## 2.2 TEMPERATUURREGELING

### 2.2.1 Inleiding

Het is mogelijk metingen te doen bij temperaturen van 1.7K tot 400K. Er zijn twee essentieel verschillende regelmechanismen voor twee temperatuurgebieden, te weten het gebied van 1.7K tot 4.4K en het gebied boven 4.4K. In figuur 2.2 zien we de sampleruimte met de componenten die een rol spelen bij de temperatuurregeling. De belangrijkste zijn:

- Een verwarmingselement dat het binnenstromende Heliumgas verwarmt, de z.g.n. gas heater.
- Verwarmingselementen langs de wand van de sampleruimte. Deze heten de sample chamber heaters
- Twee thermometers voor twee temperatuurgebieden: een germaniumthermometer voor het temperatuurgebied van 1.7K tot 40K en een platinathermometer voor temperaturen boven 40K.
- Een ruimte langs de sampleruimte waardoor heliumgas omhoog gepompt wordt. Deze ruimte wordt de cooling annulus genoemd.
- Een heliumreservoir onderaan de cooling annulus dat wordt gebruikt bij de temperatuurregeling beneden 4.4K.
- De flow impedance waarmee de instroom van vloeibaar helium vanuit het vat van de cryostaat naar het heliumreservoir onderaan de cooling annulus wordt geregeld. Deze impedance bevindt zich onderaan de meetprobe. Ze bestaat uit een dun buisje waarover een kapje is geschoven (zie figuur 2.2). Dit kapje kan verwarmd worden. Hierdoor verdampt helium in de smalle toevoer naar het buisje waardoor deze toevoer wordt afgesloten. Op deze manier is de flow te regelen



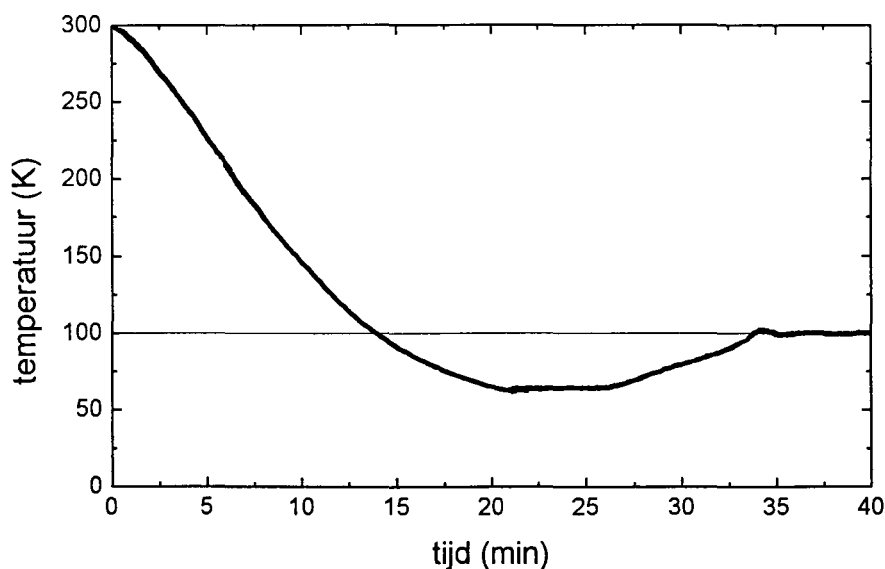
Figuur 2.2: Onderste gedeelte van de sampleruimte met elementen van het temperatuur regelsysteem.

Langs de wand van de sampleruimte bevinden zich koperen draden in verticale richting. Deze zorgen voor thermische uniformiteit. Een belangrijke rol bij de temperatuurregeling is ook weggelegd voor de pomp. Deze bevindt zich zoals al eerder gezegd in de regelkast. Hiermee wordt de druk in de cooling annulus geregeld. Om voor warmteoverdracht naar het sample te zorgen bevindt zich in de sampleruimte statisch heliumgas onder een constante, lage druk van ongeveer  $5 \times 10^{-4}$  bar. Deze druk wordt ingesteld m.b.v. de pomp. Als de druk in de sampleruimte eenmaal laag is, hoeft er niet meer gepompt te worden omdat de sampleruimte altijd afgesloten blijft. Om warmtetransport naar het vloeibare helium in de cryostaat te voorkomen bevindt zich aan de buitenkant van de cooling annulus een isolerende laag en een vacuümruijme.

Er zijn vier manieren waarop het regelsysteem de temperatuur kan regelen. Deze zijn om snel af te koelen, snel te verwarmen, de temperatuur stabiel te houden en als laatste voor temperatuurregeling beneden 4.4K. Hieronder worden deze vier toestanden beschreven.

### 2.2.2 Snel afkoelen

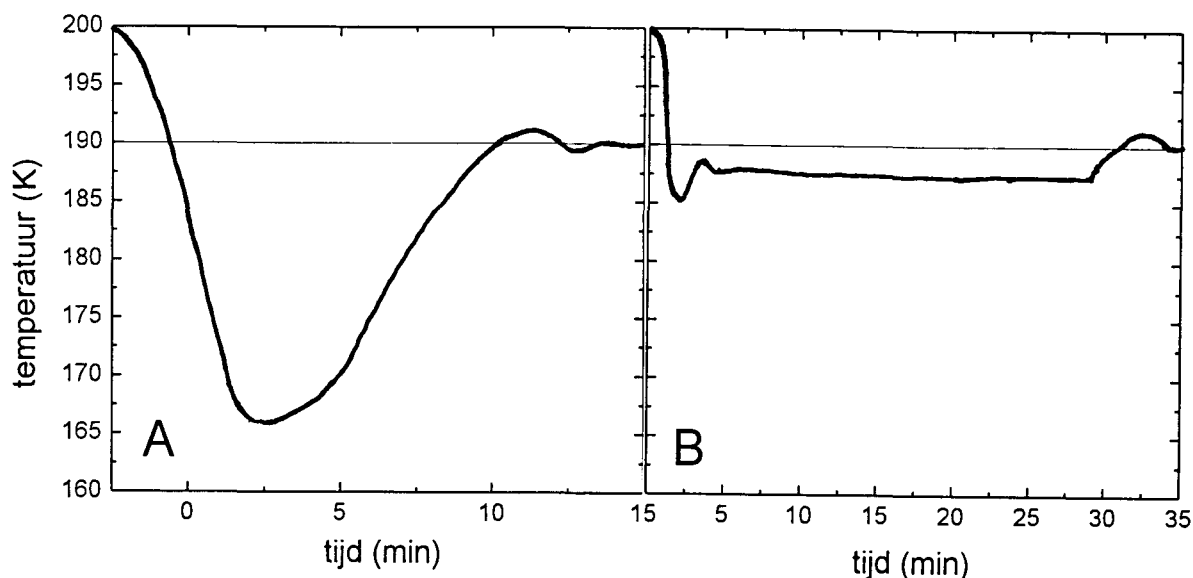
Snel afkoelen gebeurt door koud gas door de cooling annulus langs de sampleruimte te pompen. Op deze manier kan tot 30 Kelvin per minuut worden afgekoeld. Een probleem dat zich voordoet als er zo snel wordt gekoeld is dat de onderkant van de sampleruimte, waar de thermometers zich bevinden, veel sneller afkoelt dan het bovenste deel. Hierdoor ontstaan thermische gradiënten. De thermometers geven dan niet de temperatuur op de plaats van het sample aan. Om sneller thermisch evenwicht te krijgen wordt de onderkant van de samplekamer verder gekoeld dan de doeltemperatuur. De grootte van deze 'undershoot' hangt af van de begin- en eindtemperatuur en kan tot 40K oplopen. Als de laagste temperatuur is bereikt, wordt deze enkele minuten vastgehouden. Op deze manier wordt het bovenste deel van de sampleruimte afgekoeld tot bijna de goede temperatuur. Daarna wordt de onderkant van de sampleruimte m.b.v. de gasverwarmer opgewarmd tot de ingestelde temperatuur.



*Figuur 2.3: Het temperatuurverloop aan de onderkant van de sampleruimte tijdens afkoelen van 300K naar 100K.*

In figuur 2.3 zien we het temperatuurverloop tijdens het afkoelen van 300K naar 100K. We zien in deze figuur duidelijk de undershoot van ongeveer 35 graden en daarna een periode van ongeveer 5 minuten waarin de temperatuur weinig verandert. Daarna stijgt de temperatuur naar de ingestelde waarde door verwarming van het instromende gas.

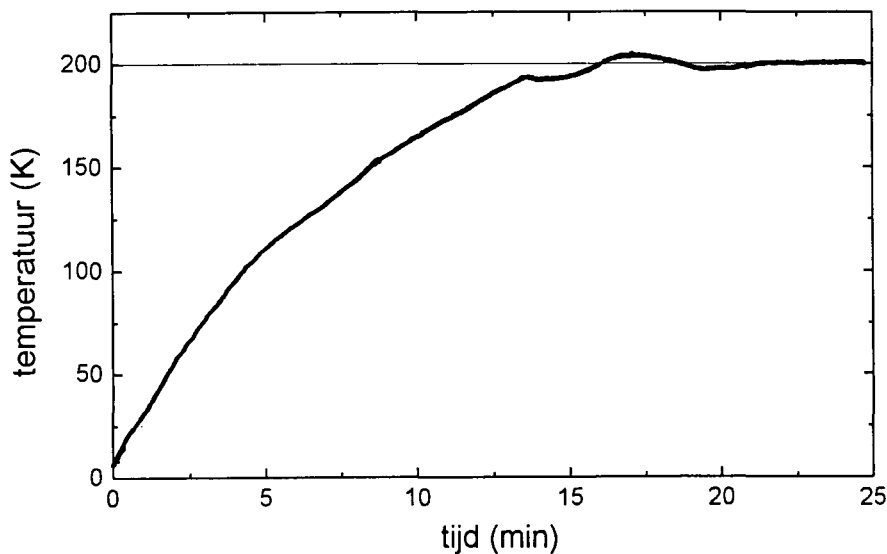
Als undershoot van de doeltemperatuur niet gewenst is, bestaat de mogelijkheid om de Undercool Off Mode te gebruiken. In deze mode wordt langzamer gekoeld door minder koud gas omhoog te pompen en de undershoot blijft beperkt tot enkele graden. Deze mode werkt alleen als de begintemperatuur lager is dan 200K en als de temperatuurverandering kleiner of gelijk is dan 10K. Als aan deze voorwaarden niet is voldaan koelt het systeem als in de Undercool On Mode. In figuur 2.4 zien we het verschil tussen de twee koel-modes. Er wordt afgekoeld van 200K naar 190K, zodat aan de voorwaarden van de Undercool Off Mode voldaan is. In het geval van koelen in de Undercool On Mode zien we een undershoot van ongeveer 35 graden. De temperatuur is stabiel na ongeveer 15 minuten. Als wordt gekoeld in de Undercool Off Mode blijft de undershoot beperkt tot ongeveer 4 graden. Het duurt dan 35 minuten voor de temperatuur stabiel is.



Figuur 2.4: Verschil tussen afkoelen in Undercool Mode (a) en Undercool Off Mode (b).

### 2.2.3 Snel verwarmen

Snel verwarmen gebeurt met de verwarmingselementen die tegen de wand van de sample-ruimte zitten. Deze kunnen de sampleruimte verwarmen met een snelheid tot 10 Kelvin per minuut. De warmte wordt zeer uniform toegevoerd, zodat thermische gradiënten worden vermeden. Als de temperatuur in de buurt komt van de doeltemperatuur wordt overgeschakeld op verwarming met het gasverwarmingselement. In figuur 2.5 staat het temperatuurverloop bij verwarmen van 10K naar 200K. We zien hoe de temperatuur eerst snel stijgt door verwarming met de elementen tegen de sampleruimte. Na ongeveer 13 minuten zien we hoe wordt overgeschakeld op verwarmen van het binnenkomende gas. Na ongeveer 25 minuten is de temperatuur stabiel.



*Figuur 2.5: Temperatuurverloop bij opwarmen van 10K naar 200K.*

#### 2.2.4 Stabiele temperatuurregeling

Om de temperatuur stabiel te houden op een ingestelde temperatuur wordt gebruik gemaakt van de gas verwarmers. Na een temperatuurverandering wordt de temperatuur stabiel genoemd als deze 1 minuut binnen een bepaalde tolerantie van de ingestelde temperatuur blijft. Deze tolerantie is normaal gesproken ingesteld op 0.5%.

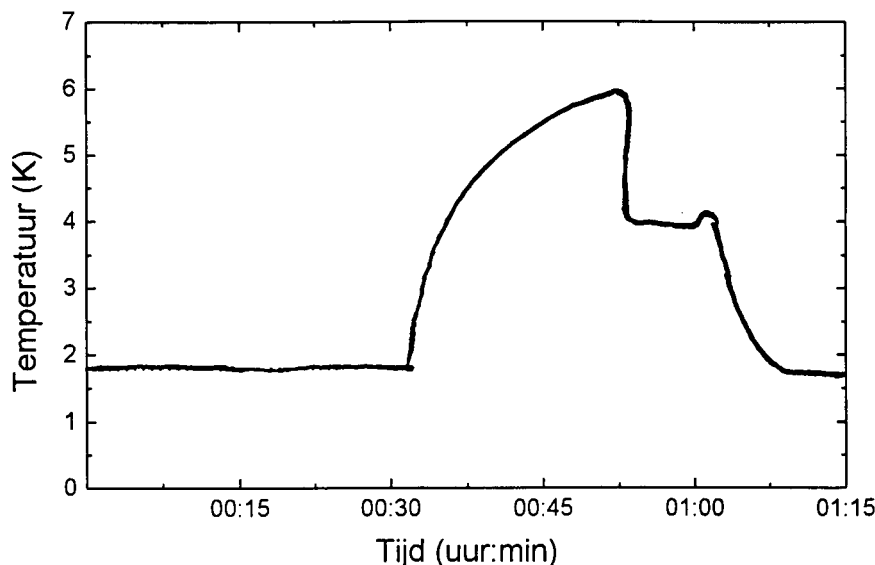
#### 2.2.5 Temperatuurregeling beneden 4.4K

Temperatuurregeling bij temperaturen onder 4.4K gebeurt door de dampdruk te regelen boven een reservoir gevuld met vloeibaar helium. Het reservoir wordt gevuld door alle verwarmers uit te zetten en de temperatuur 0.1K onder het kookpunt van vloeibaar helium te houden. Als het reservoir gevuld is wordt de toevoer afgesloten met behulp van de flow impedance en het systeem begint de gewenste temperatuur in te stellen. Als alle helium in het reservoir verdampt is, stijgt de temperatuur snel. Als het systeem deze temperatuurstijging bemerkt, wordt de vulprocedure herhaald. Dit betekent dat er maar een beperkte tijd achter elkaar bij temperaturen onder 4.4K gemeten kan worden. Daarna is het nodig om het reservoir weer te vullen voordat opnieuw afgekoeld kan worden.

In figuur 2.6 zien we het temperatuurverloop nadat de temperatuur stabiel is geworden op 1.7K. Na ongeveer een half uur is het reservoir leeg en loopt de temperatuur op naar ongeveer 6K. Dan daalt de temperatuur snel om vervolgens 11 minuten op 4.1K te blijven. Het reservoir wordt nu opnieuw gevuld. Als het reservoir vol is daalt de temperatuur weer naar 1.7K.

Hoe lang het duurt voor het reservoir opnieuw gevuld moet worden hangt af van de ingestelde temperatuur. Bij de laagst mogelijke temperatuur (1.7K) duurt het ongeveer 30 minuten voor het heliumreservoir leeg is. Bij 4K duurt dat meer dan een uur.





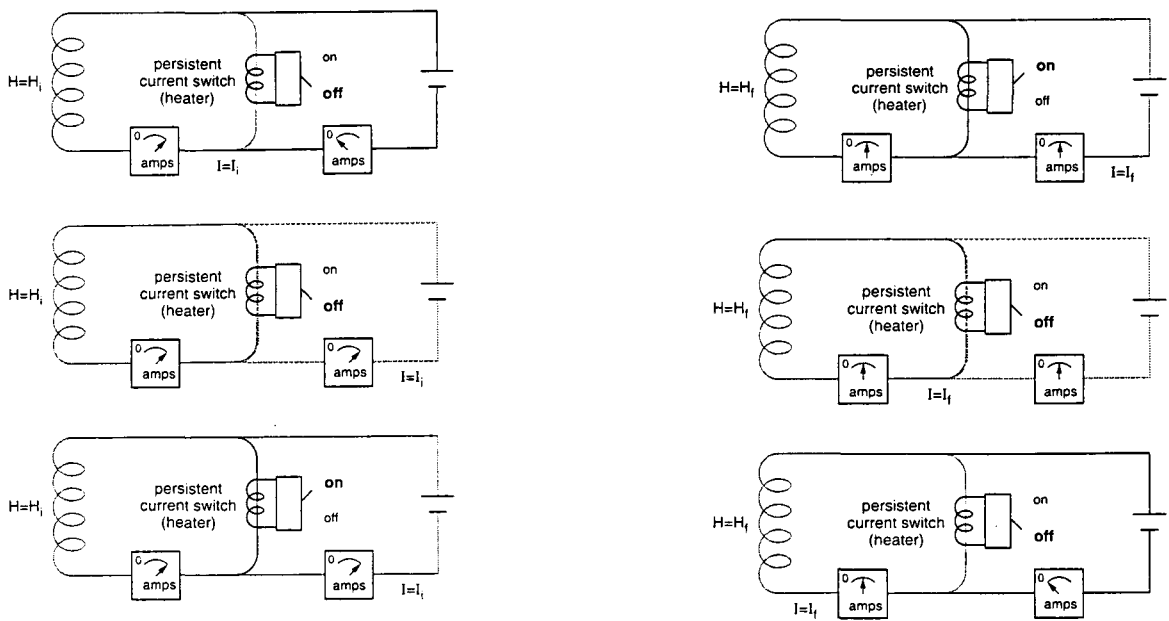
*Figuur 2.6: Temperatuurverloop als functie van de tijd wanneer een temperatuur lager dan 4.4K wordt ingesteld.*

## 2.3 VELDREGELING

### 2.3.1 Inleiding

Het magnetische veld wordt opgewekt met een supergeleidende spoel. Hiermee kunnen velden worden gegenereerd tot 5 Tesla. De supergeleidende spoel bestaat uit een gesloten kring. Hierdoor blijft een stroom die is ingesteld lopen, zonder dat hiervoor een stroombron nodig is. Deze kortgesloten toestand van de spoel heet de persistent mode. Om de stroom te veranderen moet de gesloten supergeleidende kring worden geopend. Dit gebeurt door een klein stukje van de spoel op te warmen met een heater, zodat dit stukje normaal wordt. Door een stroombron aan te sluiten over het normale stuk kan de stroom in de spoel worden veranderd. We zullen aan de hand van figuur 2.7 de stappen bespreken die worden genomen als een nieuwe waarde van het magnetische veld wordt ingesteld.

- 1) In eerste instantie is de stroom van de voeding nul, de heater is uit en de superstroom loopt in een gesloten kring.
- 2) De stroom van de voeding wordt gelijk gemaakt aan de superstroom door de spoel.
- 3) De persistent switch heater wordt aangezet, waardoor de supergeleidende kring wordt geopend.
- 4) De stroom van de voeding wordt ingesteld op de nieuwe waarde.
- 5) De persistent switch heater wordt uitgezet. De supergeleidende kring wordt nu gesloten, maar de stroom van de voeding blijft lopen.
- 6) De stroom van de voeding wordt nul gemaakt en de voeding wordt uitgeschakeld.



Figuur 2.7: Stappen die worden genomen bij het instellen van een magnetisch veld.

### 2.3.2 Operatie-modes van de spoel

Als een supergeleidende spoel in de persistent mode wordt gebracht na een veldverandering, zal het magnetische veld een beetje relaxeren als een gevolg van flux-creep in de supergeleidende windingen. Deze relaxatie kan voor enkele minuten een drift veroorzaken in het uitgangssignaal van de SQUID. De grootte van deze drift is evenredig met de grootte van de veldverandering. Bij heel gevoelige metingen kan drift problemen opleveren. Deze relaxatieverschijnselen kunnen worden geminimaliseerd door tijdens het instellen van een veldwaarde voorbij de nieuwe waarde te gaan en vervolgens met afnemende amplitude om de ingestelde waarde te oscilleren. Deze oscillaties gaan door tot het veld binnen ongeveer 100 Gauss van de gewenste waarde is, waarna het veld nauwkeurig op de ingestelde waarde wordt afgeregeld. Het gebruik van deze z.g.n. Oscillate Mode heeft dus alleen maar zin bij veldveranderingen groter dan 100G.

Als hysteresemetingen worden gedaan zijn veldoscillaties natuurlijk ongewenst. De oscillaties kunnen worden vermeden door te meten in de No Overshoot Mode. In deze mode wordt het veld monotoon veranderd van de oude naar de nieuwe waarde. In deze mode heeft het systeem langer nodig om het veld in te stellen. Bij metingen in de No Overshoot Mode kan drift een probleem worden bij het meten van kleine momenten. Dan wordt de bijdrage van drift aan de SQUID-respons van dezelfde orde grootte als de bijdrage van het samplenmoment. De invloed van drift kan worden verminderd door een pauze te lassen tussen het instellen van het veld en het meten van het moment. Meer hierover in hoofdstuk 3.

Voor het doen van snelle metingen bestaat de Hysteresis Mode. In deze mode wordt de spoel in de non-persistent mode gehouden. Dat wil zeggen dat de heat switch aan blijft, zodat de stroom via de voeding blijft lopen. Dit levert tijdswinst. Nadeel is dat er meer ruis is en dat het magneetveld minder stabiel is. Hierdoor is deze mode alleen geschikt voor het meten van momenten van  $10^{-4}$  emu en groter.

### 2.3.3 Resolution Mode

Normaal wordt het veld ingesteld met een nauwkeurigheid van 1,0 Gauss. Voor velden beneden 5000 Gauss bestaat de mogelijkheid van een High Resolution Mode. De nauwkeurigheid is dan 0,1 Gauss. Als de High Resolution Mode is geselecteerd, schakelt het systeem automatisch over naar regeling met een hoge nauwkeurigheid als dat mogelijk is. De schakelaar die de hoge of lage resolutie mode selecteert kan alleen schakelen als de stroom van de voeding nul is. Dit levert de volgende drie mogelijkheden op in het geval dat de High Resolution Mode is geselecteerd:

- 1) Veldinstelling met hoge nauwkeurigheid als zowel het oorspronkelijke als het nieuwe veld kleiner zijn dan 5000 Gauss.
- 2) Veldinstelling met hoge nauwkeurigheid als het nieuwe veld kleiner is dan 5000 Gauss en als de Oscillate Mode is geselecteerd. Als de oscillaties klein genoeg zijn om met hoge resolutie te regelen wordt de stroom (en dus ook het veld) even nul gemaakt. Dan wordt overgeschakeld op de nauwkeurige regeling waarna de oscillaties weer verder gaan.
- 3) Veldinstelling met normale nauwkeurigheid als de No Overshoot Mode is geselecteerd. Zoals gezegd is het nodig om het veld even nul te maken om naar regeling met hoge resolutie over te kunnen schakelen. Dit is in strijd met de No Overshoot voorwaarde.

## 2.4. DE SQUID-RESPONS

### 2.4.1 Inleiding

De SQUID zoals beschreven in het vorige hoofdstuk wordt in onze opstelling gebruikt om het magnetische moment van een sample te bepalen als functie van een aangelegd magneetveld en de temperatuur. Het sample wordt hiertoe door een stelsel van oppikspoelen bewogen. Als gevolg van het magnetische moment van het sample zal er een magnetische flux door de oppikspoelen gaan. Deze magnetische flux wordt in de SQUID-ring gekoppeld en de uitgangsspanning van de SQUID als functie van de positie van het sample vormt de z.g.n. SQUID-respons. Uit deze respons is het moment van het sample te berekenen.

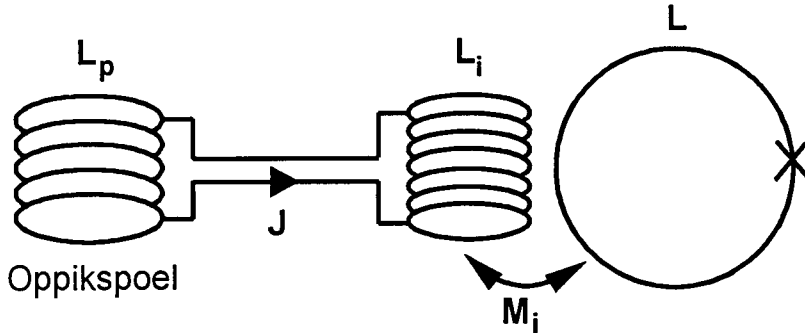
### 2.4.2 Basisprincipe

Om de werking van het oppikspoelenstelsel duidelijk te maken, bekijken we eerst een eenvoudig geval. Het eenvoudigste oppikstelsel ziet eruit als in figuur 2.8: een oppikspoel met  $N_p$  windingen en inductie  $L_p$ , verbonden met een tweede spoel met  $N_i$  windingen en inductie  $L_i$ . De tweede spoel is via een wederkerige inductie  $M_i = \alpha(LL_i)^{1/2}$  gekoppeld aan de SQUID-ring. Hierin is  $L$  de inductie van de SQUID-ring. Het spoelenstelsel is gemaakt van supergeleidende draad. Als er een flux door de oppikspoel gaat, gaat er een superstroom door het spoelenstelsel lopen. Dit is een gevolg van de fluxquantisatie-voorwaarde die geldt voor supergeleidende kringen. Als er aanvankelijk geen flux in de oppikspoel aanwezig is, zal in de aanwezigheid van een uitwendige flux een stroom gaan lopen die ervoor zorgt dat de totale flux nul blijft. Als een uitwendige flux  $\Delta\Phi$  door de oppikspoel gaat, wordt er een superstroom geïnduceerd volgens:

$$N_p \Delta\Phi + (L_i + L_p)J = 0$$

De flux die in de SQUID-ring gekoppeld wordt is nu:

$$\Delta \Phi_e = -M_i J = \frac{M_i N_p}{L_i + L_p} \Delta \Phi \quad 2.2$$



Figuur 2.8: Basisprincipe voor een oppikspoelenstelsel.

### 2.4.3 Tweede orde gradiometer

In de inleiding van deze paragraaf is verteld dat het sample in een magneetveld wordt geplaatst om het moment als functie van het veld te kunnen meten. Dit magneetveld veroorzaakt ook een flux door de oppikspoel en dus ook een bijdrage aan de uitgangsspanning van de SQUID. Ook andere bronnen in de buurt van de opstelling kunnen een ongewenste bijdrage leveren. Een oplossing voor deze problemen is het gebruik van een oppikspoelenstelsel als weergegeven in figuur 2.9. We zien in deze figuur een z.g.n. tweede orde gradiometer. Dit is een oppikspoel die zo gemaakt is dat een magnetisch veld met een constante gradiënt geen netto flux oplevert. Verder zien we een rf-filter dat ervoor zorgt dat signalen met een frequentie groter dan 20 kHz de SQUID niet bereiken. Ook zien we een heater. Deze zorgt ervoor dat een deel van het oppikspoelenstelsel normaal gemaakt kan worden, zodat de superstroom uitdempt. Dit gebeurt tijdens veranderingen van het aangelegde veld en aan het begin van elke meting.

We laten nu zien dat een magnetisch veld met een constante gradiënt geen netto flux door het oppikspoelenstelsel oplevert. We gaan daartoe uit van een magnetisch veld in de z-richting met grootte:

$$B(z) = B_0 + Cz \quad 2.3$$

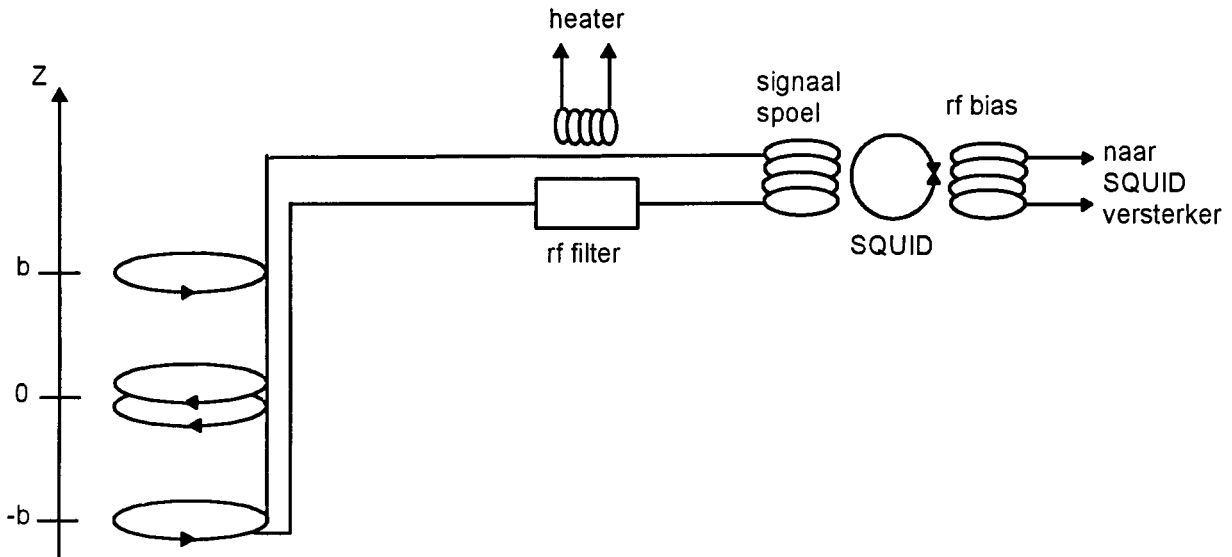
Dit is inderdaad een veld met een constante gradiënt:

$$\nabla B = C \quad 2.4$$

De oppervlakken van de vier ringen van de oppikspoel is  $A$ . Hun verticale posities zijn respectievelijk  $z=-b$ ,  $z=0$ ,  $z=0$  en  $z=b$ , zoals weergegeven in figuur 2.9. De totale flux door de gradiometer is de som van de fluxen door de vier ringen, waarbij we rekening moeten houden met de richting waarin de ringen gewonden zijn:

$$\Phi_{tot} = \Phi_1 + \Phi_2 + \Phi_3 + \Phi_4 = (B_0 + Cb - B_0 - B_0 + B_0 - Cb)A = 0 \quad 2.5$$

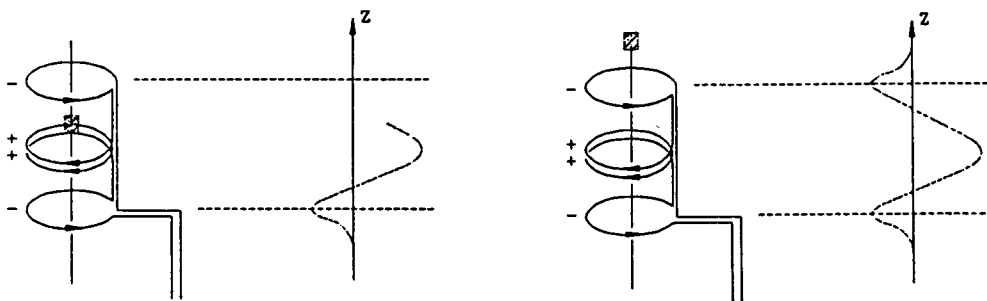
De speciale vorm van de oppikspoel zorgt er dus voor dat het homogene aangelegde veld geen signaal veroorzaakt. Omdat ook velden met een constante gradiënt geen signaal veroorzaken, zullen bronnen van magnetische flux op voldoende afstand van de opstelling geen invloed hebben.



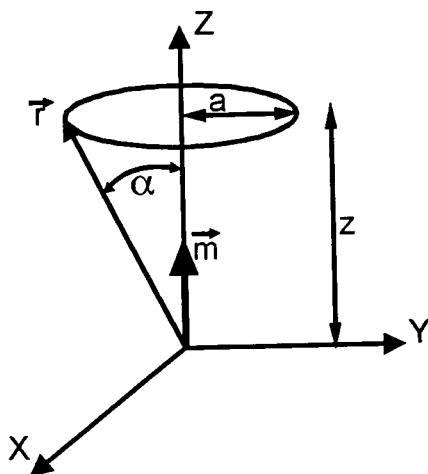
*Figuur 2.9: Tweede orde gradiometer en het systeem dat de uitwendige flux in de SQUID-ring koppelt.*

#### 2.4.4 De vorm van de SQUID-respons

In de vorige paragrafen is uitgelegd hoe het magnetische moment van een sample uiteindelijk zorgt voor een uitgangsspanning van de SQUID. In deze paragraaf bekijken we hoe uit dit signaal de grootte van het moment van het sample te bepalen is. Allereerst bekijken we hoe een sample wordt gemeten. Dit staat weergegeven in figuur 2.10: het sample wordt door de oppikspoel bewogen en de uitgangsspanning van de SQUID wordt bepaald als functie van de plaats van het sample. Om uit deze z.g.n. SQUID-respons het moment te bepalen wordt door deze kromme een theoretische lijn gefit. We gaan nu deze theoretische SQUID-respons bepalen.



*Figuur 2.10: Opbouw van een response curve als een sample door een tweede orde gradiometer beweegt.*



Figuur 2.11: Definitie van de variabelen nodig bij het berekenen van de flux door een ring t.g.v. een puntdipool.

We bepalen eerst de flux door één ring t.g.v. van een puntdipool, zoals in figuur 2.11. Voor de vectorpotentiaal van een puntdipool geldt:

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{m} \times \vec{r}}{r^3} \quad 2.6$$

Hierin is  $\vec{m}$  het puntdipoolmoment. Voor de flux door een willekeurige gesloten kring C geldt:

$$\Phi = \oint_C \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad 2.7$$

Als we vergelijking 2.6 uitschrijven met behulp van figuur 2.11, vinden we:

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{m r \sin \alpha}{r^3} \vec{e}_\phi \quad 2.8$$

Hierin is  $\vec{e}_\phi$  de eenheidsvector in de tangentiële richting. De hoek  $\alpha$  wordt gedefinieerd in figuur 2.11. Als we dit invullen in vergelijking 2.7 vinden we voor de flux:

$$\Phi = \frac{\mu_0 m a}{4\pi r^3} \oint_C \vec{e}_\phi \cdot d\vec{l} = \frac{\mu_0 m a}{4\pi r^3} 2\pi a = \frac{\mu_0 m a^2}{2 r^3} = \frac{\mu_0 m}{2} \frac{a^2}{(a^2 + z^2)^{3/2}} \quad 2.9$$

Hierin is ingevuld:

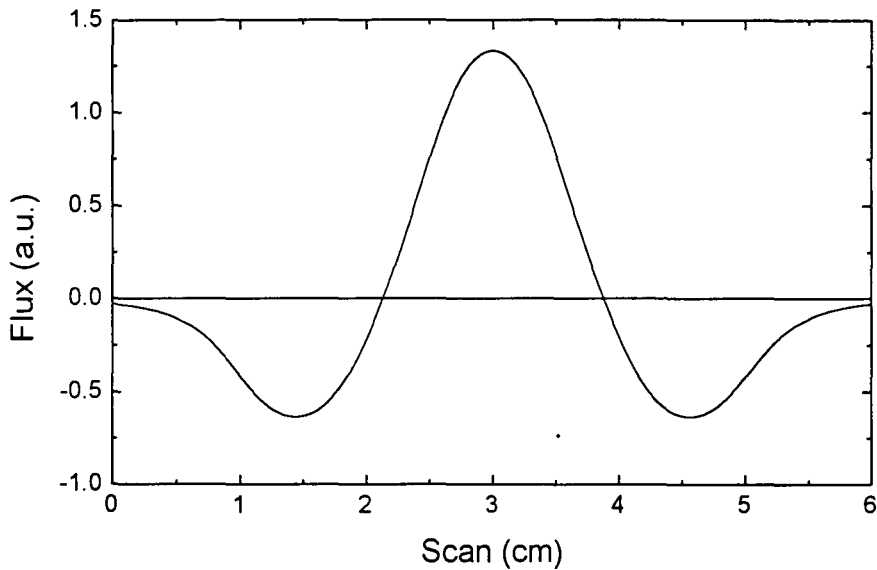
$$r^2 = a^2 + z^2 \quad 2.10$$

We hebben nu een functie voor de flux door een cirkelvormige ring t.g.v. een puntdipool als functie van  $z$ , met  $z$  gedefinieerd als in figuur 2.11. Om de flux door de gradiometer te berekenen moeten we de bijdragen voor vier ringen optellen, analoog aan wat gedaan is in

vergelijking 2.5. We vinden zo:

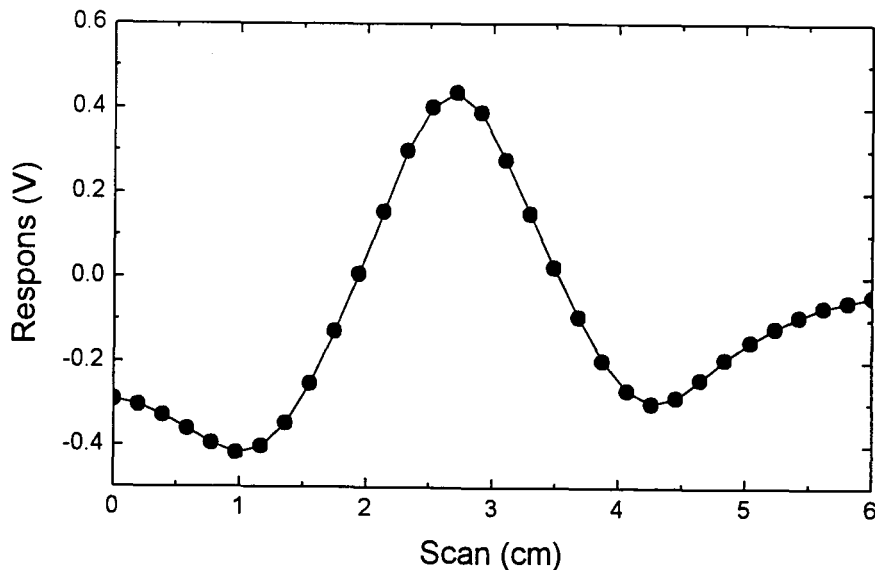
$$\Phi_{tot} = \frac{\mu_0 m}{2} \left( \frac{2a^2}{(a^2 + z^2)^{3/2}} - \frac{a^2}{(a^2 + (z-b)^2)^{3/2}} - \frac{a^2}{(a^2 + (z+b)^2)^{3/2}} \right) \quad 2.11$$

Deze functie staat weergegeven in figuur 2.12. De gemeten uitgangsspanning van de SQUID is evenredig met deze theoretische kromme. Door de uitgangsspanning van de SQUID te fitten aan formule 2.11 kan het moment van het sample worden bepaald. Het is wel eerst nodig om de opstelling te ijken, om de evenredigheidsconstante te bepalen. Dit gebeurt met een sample waarvan het moment bekend is.



Figuur 2.12: Theoretische squid-respons

Een gemeten SQUID-respons ziet er in eerste instantie anders uit. In figuur 2.13 staat een voorbeeld. We zien een bijdrage van drift en een verschuiving langs de y-as. Voor deze twee bijdragen wordt eerst gecorrigeerd voordat een fit gemaakt wordt.



Figuur 2.13: Ruwe SQUID-respons.

### 2.4.5 Het ijken van de SQUID

In deze paragraaf wordt in het kort uiteengezet hoe de opstelling geïjkt moet worden. Dit ijken hoeft in principe alleen te gebeuren als de meetprobe opgewarmd is geweest. Het ijken gebeurt met een Palladium-sample dat door de fabrikant van de opstelling meegeleverd is. Eerst wordt de susceptibiliteit van het sample bepaald met behulp van de opstelling. Dit kan bijvoorbeeld door de magnetisatie bij een aantal waarden van het aangelegde magnetische veld te bepalen en deze magnetisatie te delen door de grootte van het veld:

$$\chi = \frac{M}{H} \quad 2.12$$

Het gemiddelde van deze metingen is de gemeten susceptibiliteit. De theoretische waarde van de susceptibiliteit van het Palladium-sample is gelijk aan de massa van het sample maal  $5.25 \times 10^{-6}$ , de susceptibiliteit per gram van Palladium bij kamertemperatuur. De nieuwe waarde voor de z.g.n. 'longitudinale SQUID callibratie factor' wordt nu gevonden door:

$$\text{nieuwe cal. factor} = \text{oude cal. factor} \times \frac{\text{gemeten susceptibiliteit}}{\text{theoretische susceptibiliteit}}$$

Deze waarde moet worden ingevoerd bij de Calibration Factors in het Diagnostics Menu.

### 2.4.6 Fit-procedures

In paragraaf 2.4.4 is de vorm van de theoretische SQUID-respons afgeleid. Deze theoretische respons wordt gefit aan de gemeten respons om zo het moment van het sample te bepalen. Het besturingsprogramma kent drie algorithmes om deze fit te maken, te weten: full scan, lineaire regressie en iteratieve regressie. Alvorens de verschillende fitmethodes te bespreken wordt eerst iets verteld over het begrip scanlengte.

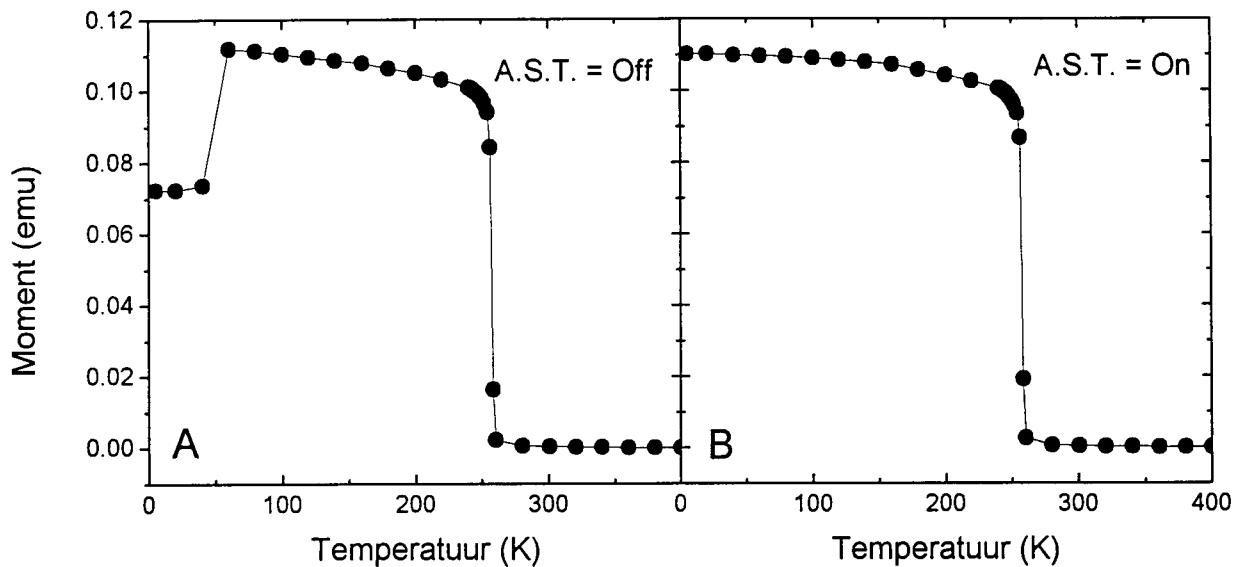
De scanlengte is de verticale afstand waarover het sample wordt bewogen bij het meten van een respons-curve. Omdat het magnetische veld wordt opgewekt met een solenoïde, zal het veld niet homogeen zijn langs de verticale as. Hierdoor ondervindt het sample veldvariaties als het door de oppikspoelen wordt bewogen. Deze variaties zijn ongeveer 0.005% bij een scanlengte van 2 cm en ze lopen op tot bijna 6% bij een scanlengte van 8 cm. Als deze variaties een probleem vormen is het dus noodzakelijk een kleine scanlengte te kiezen.

Dan zullen we nu de verschillende fitprocedures bekijken. Bij de Full Scan methode wordt het oppervlak onder de respons-curve bepaald. Dit oppervlak is evenredig met het magnetische moment. De methode vereist dat het sample goed is gecentreerd en dat over een lange scanlengte (minimaal 6 cm) wordt gemeten. De Lineaire Regressie methode maakt een fit van de theoretische respons curve door de gemeten curve. De minimale scan lengte is 2 tot 4 cm en het sample moet goed gecentreerd zijn. De Iteratieve Regressie methode maakt ook een fit door de respons curve. De minimale scan lengte is 2 tot 4 cm. Deze methode heeft als voordeel dat gecorrigeerd wordt als het sample niet goed gecentreerd is. Deze correctie werkt goed bij afwijkingen kleiner dan 5 mm.



### 2.4.7 Auto Sample Tracking

Om de gemeten SQUID-respons te kunnen fitten is het van belang dat het sample goed gecentreerd is. Dit centreren gebeurt voor aanvang van een meting. Als tijdens een meting de temperatuur wordt veranderd, zal de lengte van de samplestok veranderen. Het sample blijft dan niet gecentreerd. Weliswaar corrigeert het iteratieve fitprogramma voor het niet goed gecentreerd zijn van het sample, maar als het sample meer dan 5 mm uit het midden is lukt fitten met dit programma niet meer. Dan wordt door het besturingsprogramma automatisch overgeschakeld op het lineaire fitprogramma. Dit programma gebruikt minder parameters, zodat fitten wel lukt. We hebben echter gezien dat dit programma alleen het juiste moment oplevert als het sample goed is gecentreerd. En dat laatste is nu juist niet het geval.



Figuur 2.14: Field Cooled meting gedaan zonder Auto Sample Tracking (a) en met Auto Sample Tracking (b).

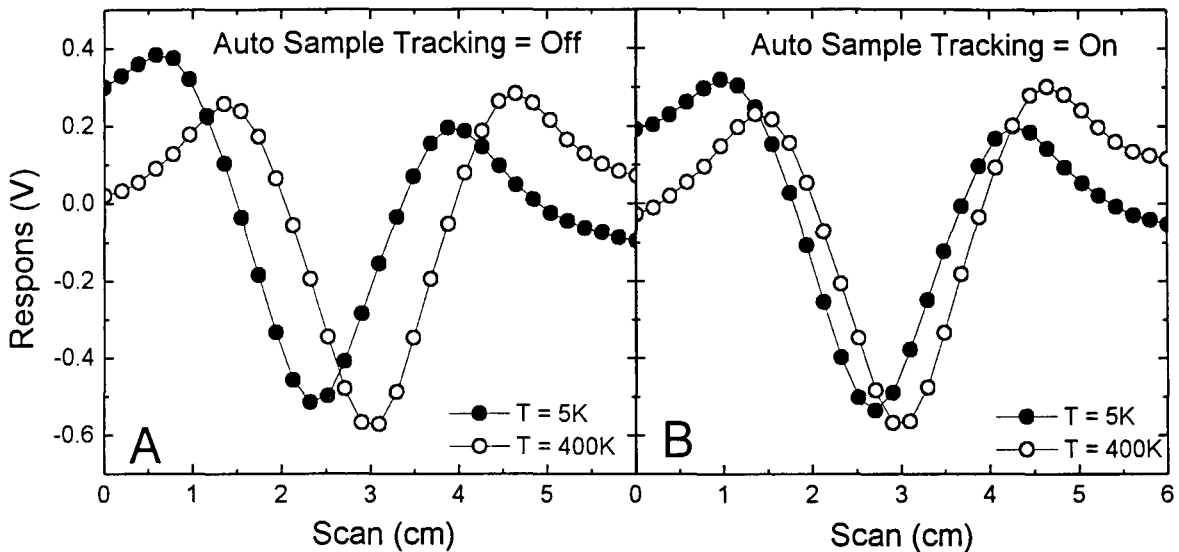
In figuur 2.14a staan de meetresultaten van een meting van het moment als functie van de temperatuur. De meting is gedaan bij een constant veld van 100G. Het sample is gecentreerd bij 400K. De temperatuur gaat stapsgewijs van 400K naar 10K. Dit is een z.g.n. Field Cooled meting. De momenten in het gebied van 400K tot 55K zijn bepaald met de iteratieve fitmethode. Vanaf 45K is het meetprogramma overgeschakeld de lineaire fitmethode. (De gebruikte fitmethode is terug te vinden in het datafile.) Duidelijk is een stap in de grootte van het moment te zien, als gevolg van het feit dat de lineaire methode niet betrouwbaar is als het sample niet goed is gecentreerd.

Het besturingsprogramma kent een optie om dit soort problemen te voorkomen. Deze optie heet Auto Sample Tracking (A.S.T.). Als in de A.S.T. mode wordt gemeten wordt de positie van het sample aangepast als de temperatuur verandert. In figuur 2.14b zien we de meting die hierboven is beschreven, maar nu gemeten met A.S.T. Nu zijn de momenten in het gehele temperatuurgebied bepaald met de iteratieve methode. In figuur 2.15 wordt duidelijk hoe A.S.T. werkt. We zien respons curves van een sample dat is gecentreerd bij 400K en daarna afgekoeld naar 5K. In één geval is afgekoeld zonder A.S.T. en in het andere geval met A.S.T. We zien dat het sample met A.S.T. binnen de marge van 5 mm blijft die nodig is om de iteratieve regressie te kunnen gebruiken. De correctie van de samplepositie gebeurt door de nulstand van het Sample Transport Mechanisme aan te passen. Als het sample bij kamertemperatuur in de opstelling wordt

gebracht en daarna afgekoeld, zal de nulstand naar beneden moeten bewegen omdat de samplestok krimpt. Het is daarom nodig om de nulstand bij kamertemperatuur hoger te kiezen dan de laagst mogelijke positie van het Sample Transport Mechanisme. Dit gebeurt met het Initialize Sample Position comando.

Bij het plaatsen van een sample moeten dus de volgende stappen worden genomen:

- 1) zet A.S.T. aan;
- 2) initialize sample position;
- 3) centreer het sample.



*Figuur 2.15: Invloed van Auto Sample Tracking op de plaats van de SQUID-respons bij temperatuurveranderingen.*

## 2.5 SEQUENCE FILES

### 2.5.1 Inleiding

Het besturingsprogramma bevat een editor voor het maken van z.g.n. sequence files. Alle opdrachten die aan de opstelling kunnen worden gegeven, kunnen in een sequence file worden geprogrammeerd. Als een sequence file wordt aangeroepen worden deze opdrachten één voor één uitgevoerd. Op deze manier is het mogelijk één of meerdere metingen te programmeren.

In deze paragraaf wordt de manier beschreven waarop ik de sequence files heb gemaakt. Het bleek het handigst standaard files te maken die voor elke meting maar een klein beetje aangepast hoeven te worden. Twee standaard files worden besproken die zijn gebruikt voor twee veel voorkomende metingen: hysteresemetingen en Zero Field Cooled metingen.

## 2.5.2 Hysteresemetingen

De listing van de sequence files voor een hysterese meting staan in figuur 2.16. Een sequence file voor een hysterese meting bestaat uit vier delen.

### Sequence File: MEETLUS

```

1. Graph Type: EMU vs. Field
2. Clear Graph Data
3. Hi-res: Enabled
4. Data Points: 32
5. Scans to Avg.: 2
6. Set Axis: Longitudinal
7. L. Algorithm: Iterative Reg.
8. Damping Mode: No Overshoot
9. Set Temperature: 50.00
10. Data Title: OPMERKINGEN
11. Data File: DATAFILE
12. Start Sequence: LUS_5T
13. Set Field: 0.00
14. Set Temperature: 10.00
15. End of Sequence

```

### Sequence File: LUS\_5T

```

1. Set Field: 50000.00
2. Pause: 60.000
3. Measure DC
4. Set Field: 45000.00
5. Pause: 60.000
6. Measure DC
7. Set Field: 40000.00
8. Pause: 60.000
9. Measure DC
10. Set Field: 35000.00
11. Pause: 60.000
12. Measure DC
13. Set Field: 30000.00
14. Pause: 60.000
15. Measure DC
16. End of Sequence

```

*Figuur 2.16: Listings van de sequence files die worden gebruikt bij een hysterese meting.*

- 1) Eerst worden enkele parameters ingesteld. Deze zijn hetzelfde voor elke hysterese meting. In figuur 2.16 gebeurt dit in regel 1 t/m 8. Het is niet noodzakelijk om deze instellingen via een sequence file te doen, maar omdat deze parameters veranderd kunnen zijn ten behoeve van vorige metingen is het veiliger deze in het file op te nemen. Met Graph Type kies je een assenstelsel in het plot window op het computerscherm, waarin het verloop van de meting te volgen is. Clear Graph Data maakt het plot window leeg. Data Points zijn het aantal punten waaruit een respons-curve wordt opgebouwd. Met Scans to Average stel je het aantal respons-curves in dat wordt gemiddeld om één meetpunt te bepalen. In de meetprobe bevinden zich twee oppikspoelenstelsels en twee SQUID's: één voor meting van het verticale moment en één voor het horizontale moment. Met Set Axis selecteer je de as waarlangs gemeten wordt.
- 2) Vervolgens worden de temperatuur waarbij gemeten moet worden en de naam van het datafile opgegeven. De naam achter 'Data File' in regel 12 is de naam die het datafile krijgt. De 'Data Title' kan eventuele extra informatie over de meting bevatten, zoals de samenstelling van het sample, het soort meting, enz. Deze informatie wordt opgeslagen in het datafile.
- 3) Dan wordt een nieuwe sequence file aangeroepen waarin de veldwaarden worden ingesteld en de metingen worden gedaan.
- 4) Als laatste wordt de eindsituatie van de opstelling gegeven. Na het doorlopen van een hysterese lus heeft het veld vaak een (hoge) waarde. Daarom wordt aan het eind van de sequence file het veld nul gemaakt. Dit om te voorkomen dat er lange tijd een veld in de spoel blijft, wat een groot Heliumverbruik tot gevolg heeft. Het is vaak ook nodig om de temperatuur aan het eind een lage waarde te geven (bijvoorbeeld 10K). Dit ook in verband met het

## Heliumverbruik.

Als meerdere hysteresemetingen aan een sample moeten worden gedaan bij verschillende temperaturen, is het alleen maar nodig om het blok van regel 9 t/m 12 te herhalen.

## 2.5.3 Zero Field Cooled metingen

Bij een Zero Field Cooled meting wordt een sample afgekoeld zonder veld, vervolgens wordt er een (klein) veld aangezet en wordt het moment gemeten bij oplopende temperatuur. De listings van de sequence files voor Zero Field Cooled metingen staat in figuur 2.17.

## Sequence File: MEETZFC

1. Graph Type: EMU vs. Temp
2. Clear Graph Data
3. Hi-res: Enabled
4. Data Points: 32
5. Scans to Avg.: 2
6. Set Axis: Longitudinal
7. L. Algorithm: Iterative Reg.
8. Damping Mode: Oscillate
9. Set Field: 0.00
10. Set Temperature: 400.00
11. Pause: 1800.000
12. Set Temperature: 5.00
13. Pause: 0.000
14. Set Field: 50.00
15. Data Title: OPMERKINGEN
16. Data File: DATAFILE
17. Start Sequence: TEMPLOOP
18. Set Field: 0.00
19. Set Temperature: 10.00
20. End of Sequence

## Sequence File: TEMPLOOP

1. Set Temperature: 5.00
2. Measure DC
3. Set Temperature: 25.00
4. Measure DC
5. Set Temperature: 45.00
6. Measure DC
7. Set Temperature: 65.00
8. Measure DC
9. Set Temperature: 85.00
10. Measure DC
11. Set Temperature: 105.00
12. Measure DC
13. Set Temperature: 125.00
14. Measure DC
15. Set Temperature: 145.00
16. Measure DC
17. Set Temperature: 165.00
18. Measure DC
19. End of Sequence

*Figuur 2.17: Listings van de sequence files die worden gebruikt bij een Zero Field Cooled meting.*

De eerste acht regels zien er weer hetzelfde uit als bij de hysteresemeting, behalve het Graph Type (vanzelfsprekend) en de Damping Mode. Omdat overshoot van het veld nu geen problemen oplevert is het beter de snellere Oscillate Mode te kiezen. In regel 9 wordt het veld nul gemaakt. Het is van groot belang dat het veld tijdens het afkoelen stabiel is en dat er geen remanent veld meer aanwezig is. Als tijdens voorgaande metingen grote velden zijn gebruikt, is het verstandig om voor de meting het veld enige tijd te laten relaxeren voor een zero field cooled meting gestart wordt. In regel 11 is hierom een pauze van 30 minuten ingelast. Het beste is om de metingen zo te plannen dat een Zero Field Cooled meting niet gelijk na een meting wordt gedaan met hoge velden. De pauzes die worden ingelast zijn ook van belang om het instellen van de temperaturen en de velden in de goede volgorde te laten verlopen. Het instellen van de temperatuur en het veld gebeurt namelijk gelijktijdig. Een meting wordt gedaan als beide stabiel zijn. De pauze in regel 13 zorgt ervoor dat eerst de temperatuur wordt ingesteld en daarna pas het veld.

### 2.5.4 Slotopmerkingen

- Door het gedeelte met de feitelijke metingen als functie van het veld of de temperatuur onder te brengen in een andere sequence file, ontstaat een overzichtelijke structuur. Het verloop van een meting valt in één oogopslag te overzien.
- De instellingen van de opstelling blijven na een meting in de toestand waarin ze tijdens de meting worden gezet. Als bijvoorbeeld tijdens een zero field cooled meting de spoel in de Oscilate Mode wordt gezet, zal deze instelling zo blijven na afloop van de meting. Als de volgende meting een hysteresemeting is, is deze instelling niet gewenst. Daarom is het veiliger om de belangrijkste instellingen in de sequence file op te nemen.
- Voor een nieuwe meting hoeven maar enkele aanpassingen aan een sequence file te worden gemaakt. Dit bespaart tijd en voorkomt vergissingen bij het programmeren.
- Doordat het gewoonte wordt om voor elke meting het sequence file aan te passen wordt niet vergeten om bijvoorbeeld de filenaam te veranderen.
- Het is belangrijk dat men zich realiseert dat het instellen van het veld en de temperatuur gelijktijdig gebeurt. Als dit het verloop van een meting ongewenst beïnvloedt is het nodig om pauzes in te lassen.
- Aan het eind van een meting moet de eindtoestand van de opstelling niet worden vergeten. Als de opstelling langere tijd onnodig bij een hoge temperatuur of met een veld aanwezig blijft staan, is dit zeer nadelig voor het Heliumverbruik. Als het Helium oprakt terwijl er een veld in de spoel aanwezig is zal de spoel quenchen!

## 2.6 SAMPLEHOUDERS

### 2.6.1 Inleiding

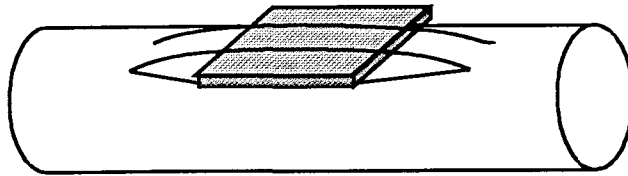
Ik heb voor mijn metingen twee soorten samplehouders gebruikt. In het ene geval worden de samples in de sampleruimte gebracht m.b.v. een samplestok met aan het eind een rietje vastgemaakt. Het rietje doet dienst als samplehouder. De tweede samplehouder is de z.g.n. Horizontale Sample Rotator. Dit is een houder waarmee het sample om een horizontale as kan worden gerooteerd. In de volgende paragrafen wordt meer verteld over de twee samplehouders.

### 2.6.2 Rietje als samplehouder

De rietjes die zijn gebruikt als samplehouder zijn gewone drinkrietjes. Ze zijn om een aantal redenen zeer geschikt als samplehouder:

- 1) Ze zijn gemakkelijk aan de samplestok vast te maken. Door tape om het eind van de samplestok te wikkelen kan deze zo dik gemaakt worden dat de rietjes er precies om passen.
- 2) Ze zijn voldoende lang om ruimschoots door de oppikspoelen te passen: de rietjes zijn 19 cm lang en het oppikspoelenstelsel is 3 cm lang. Hierdoor geven ze een kleine bijdrage aan de SQUID-uitgangsspanning. Op de bijdrage van het rietje aan het signaal kom ik in het volgende hoofdstuk nog terug.
- 3) Samples van verschillende groottes en vormen zijn te monteren zonder dat tape of lijm nodig is om de samples te fixeren. Voor metingen met het veld evenwijdig aan het oppervlak van van sample kunnen de samples worden gemonteerd als in figuur 2.18: er worden twee sneetjes in

het rietje gemaakt waar het sample ingeschoven wordt. Om te voorkomen dat het sample tijdens het inbrengen of tijdens de meting verschuift wordt een tweede rietje over de hele lengte opengesneden en om het eerste rietje gedaan. Op die manier ontstaat een zo homogeen mogelijke houder.



*Figuur 2.18: Bevestiging van een sample aan een rietje.*

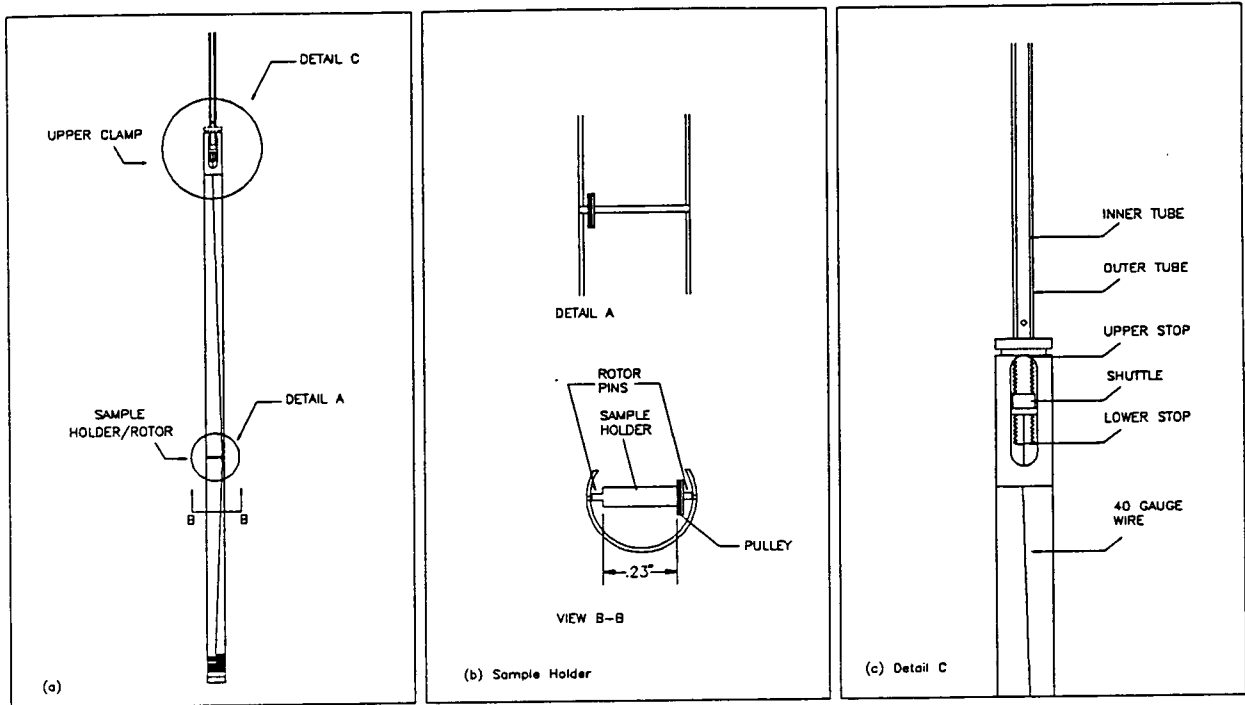
### 2.6.3 De Horizontale Sample Rotator

De Horizontale Sample Rotator is een samplehouder die door de fabrikant van de opstelling is meegeleverd. Met deze houder kunnen samples over 360 graden om een horizontale as worden gedraaid, in stapjes van minimaal 0,1 graad<sup>10</sup>. Het onderste deel van de rotator staat afgebeeld in figuur 2.19. Het onderste deel van de houder bestaat uit een gedeeltelijk opengewerkt buisje. Halverwege dit buisje bevindt zich de plaats waar het sample wordt gemonteerd: een klein metalen plaatje dat kan worden gedraaid m.b.v. een metaaldraadje om een wieltje. Het draadje is onderin het buisje bevestigd aan een veer. Aan de bovenkant van het buisje zit de draad vast aan een pendel dat op een neer beweegt over een schroefdraad.

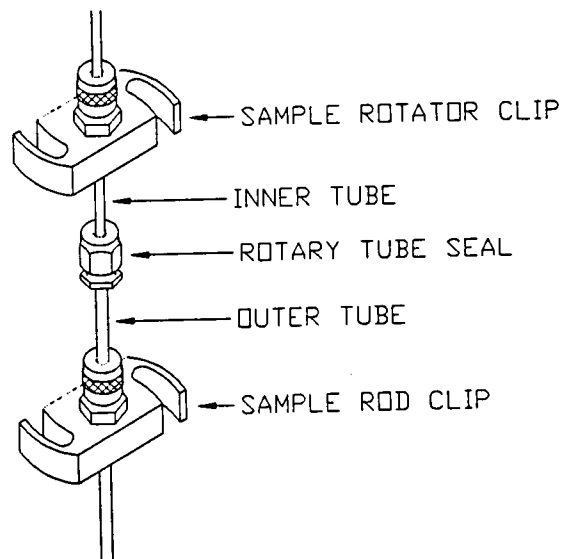
De samplestok bestaat uit twee concentrische buisjes, zodat het binnenste buisje kan draaien in het buitenste buisje. In figuur 2.20 zien we de bovenkant van de samplestok. Er zijn twee clips die vastgemaakt worden aan het Sample Translatie Mechanisme. M.b.v. een stappenmotor wordt de bovenste clip, die vastzit aan het binnenste buisje, gedraaid. De stappenmotor wordt door het besturingsprogramma aangestuurd. Het is dus mogelijk metingen met verschillende posities van het sample achter elkaar te programmeren.

Door de afmetingen van de sample houder zijn de afmetingen van een sample aan een maximum gebonden. Het sample moet zo klein zijn dat het vrij rond kan draaien in de houder. Het sample kan aan de houder worden bevestigd door het vast te knopen met een stukje teflontape.

Na afloop van een meting moet altijd worden gecontroleerd of het sample inderdaad de rotatie heeft gemaakt die geprogrammeerd was. Het metaaldraadje dat ervoor zorgt dan de samplehouder roteerd, kan gemakkelijk over het wieltje slippen. Als het sample een beetje verschuift tijdens het inbrengen van de houder, of als het teflontape stug wordt omdat gemeten wordt bij lage temperaturen, kan de samplehouder vastlopen.



Figuur 2.19: De Horizontale Sample Rotator



Figuur 2.19: De bovenste componenten van de Horizontale Rotator





## HOOFDSTUK 3: MEETNAUWKEURIGHEID

De absolute meetnauwkeurigheid van de opstelling (het kleinste moment dat gemeten kan worden) is volgens de fabrikant  $10^{-7}$  emu voor metingen bij velden kleiner dan 1T en  $5 \times 10^{-7}$  emu voor velden daarboven. De relatieve nauwkeurigheid (de kleinste verandering in het moment dat gemeten kan worden) is  $10^{-8}$  emu voor metingen bij velden kleiner dan 1T,  $10^{-7}$  emu voor velden tussen 1 en 2T en  $5 \times 10^{-7}$  emu voor velden groter dan 2T. Het maximale moment dat kan worden gemeten is ongeveer 2.0 emu. De nauwkeurigheid wordt door de fabrikant gecontroleerd met een klein kopersample. Onze samples hebben vaak minder ideale afmetingen en een ingewikkeldere structuur. Als we meer weten over de aspecten die een rol spelen bij de betrouwbaarheid van een meting kunnen we uitspraken doen over de absolute meetnauwkeurigheid tijdens onze metingen. In dit hoofdstuk komen de volgende onderwerpen aan bod:

- 1) Welke grootheden hebben invloed op de nauwkeurigheid van een meting?
- 2) Hoe kunnen we achteraf bepalen of een meting betrouwbaar verlopen is?
- 3) Wat kunnen we doen om de kwaliteit van een meting te verbeteren?
- 4) Wat kunnen we zeggen over de absolute en relatieve nauwkeurigheid?

### 3.1 STORENDE INVLOEDEN

#### 3.1.1 Inleiding

In deze paragraaf worden enkele onderwerpen besproken die invloed hebben de nauwkeurigheid van een meting: de grootte van het sample, de stabiliteit van het aangelegde magneetveld, ruis, het signaal van de samplehouder, de bijdrage van het substraat en de Scan Lengte.

#### 3.1.2 De grootte van het sample

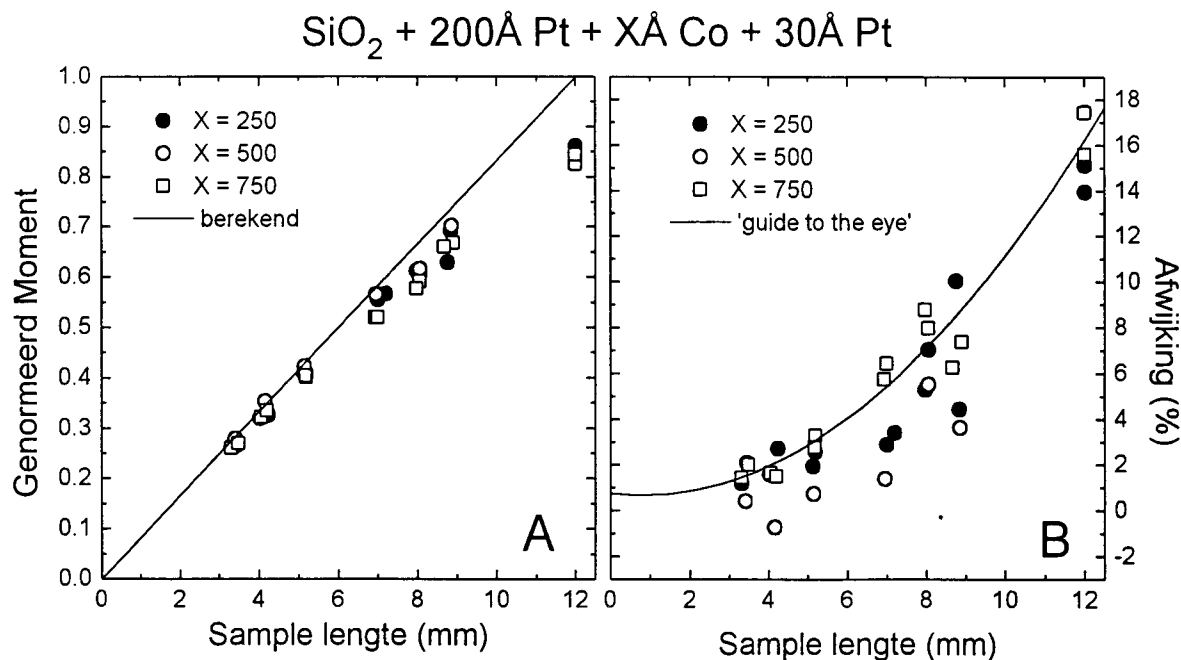
Omdat de opstelling werkt met oppikspoelen die een bepaalde afmeting hebben, zal de grootte van het sample invloed hebben op het meetresultaat. We kunnen ons bijvoorbeeld voorstellen dat een oneindig lang homogeen sample dat door de oppikspoelen beweegt, geen fluxverandering veroorzaakt. Ook is het zo dat de gemeten SQUID-respons wordt gefit aan de theoretische respons van een puntdipool. De respons van lange samples zal steeds moeilijker te beschrijven zijn met de formules voor puntdipolen.

Naar aanleiding van vragen mijnerzijds over de invloed van de lengte op de resultaten heeft de fabrikant een grafiek opgestuurd met de afwijking als functie van de samplegrootte voor cilindervormige samples. Deze grafiek staat in appendix 1. We zien dat de afwijking bij een lengte van 9 mm maximaal 8% is. Door deze lengteafhankelijkheid wordt in de handleiding van de opstelling geadviseerd geen samples te meten langer dan 1 cm.

Omdat de standaardgrootte van veel van onze samples  $4 \times 12$  mm is en omdat onze samples niet cilindervormig zijn, leek het nuttig om de invloed van de samplelengte op het resultaat te bekijken. Daartoe zijn drie series samples gegroeid met behulp van HV-Magnetron sputteren. De samples bestaan uit een  $\text{SiO}_2$ -substraat met daarop:  $200\text{\AA}$  Pt +  $X\text{\AA}$  Co +  $30\text{\AA}$  Pt. Hierin is X

gelijk aan 250, 500 of 750. Op de samples waren krasjes gemaakt, zodat ze eenvoudig gebroken konden worden. Op die manier ontstonden drie series met variërende lengte. Van alle samples is het verzadigingsmoment gemeten als functie van de lengte. De verzadigingsmomenten van de samples zijn berekend met behulp van de verzadigingsmagnetisatie van bulk-Co, 1.79T, en de nominale dikten. De gemeten en berekende momenten voor elke Co-dikte zijn op elkaar gedeeld. De op die manier ontstane genormeerde momenten zijn uitgezet als functie van de sample-lengte in figuur 3.1a. De rechte lijn geeft de berekende waarde aan. In figuur 3.2b staan de verschillen tussen de gemeten en de berekende verzadigingsmomenten als functie van de samplelengte. We zien dat de gemeten momenten steeds meer van de berekende waarde afwijken naarmate de samplegrootte toeneemt. Dit is in overeenstemming met de verwachting. Voor sample-lengtes tot 6 mm is de afwijking kleiner dan 4%. Voor grotere lengtes neemt de afwijking snel toe tot ongeveer 17% voor samples van 12 mm.

We kunnen nu dus enigszins corrigeren voor de invloed van de samplelengte. Omdat de resultaten in figuur 3.1 veel ruis vertonen zal bij langere samples een nauwkeurigheid van 4% het maximaal haalbare zijn. Uiteraard kunnen samples met dezelfde grootte wel onderling vergeleken worden.



Figuur 3.1: Genormeerde verzadigingsmomenten als functie van de samplelengte (a) en de afwijking tussen de gemeten momenten en de berekende momenten (b).

### 3.1.3 Stabiliteit van het veld: drift

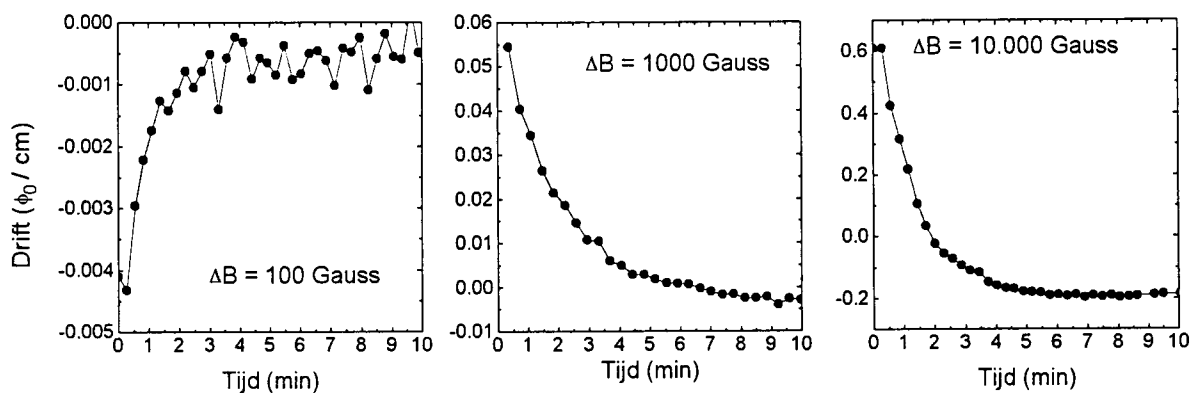
Als een supergeleidende spoel in de persistent mode wordt gebracht na een veldverandering, zal het magnetische veld een beetje relaxeren als gevolg van flux-creep in de supergeleidende windingen, zoals verteld in paragraaf 2.3.2. De oppikspoelen zijn zo uitgebalanceerd dat signalen ten gevolge van de magneet voor 99.9% worden geweerd. Door de hoge gevoeligheid van de SQUID veroorzaakt de relaxatie van het veld toch een drift in de uitgangsspanning. Voor de drift

in de respons curve wordt door de SQUID-software gecorrigeerd, ervan uitgaande dat de drift lineair is. Als de drift klein is ten opzichte van de bijdrage van het sample, zullen er geen problemen optreden. Als de bijdrage van drift (veel) groter is dan de bijdrage van het sample, zal er meer ruis in de curve komen omdat er 'twee bijna even grote getallen van elkaar worden afgetrokken'.

We willen graag meer weten over de grootte van de drift en over de tijd die nodig is voor het veld gestabiliseerd is. Daarom is het volgende experiment gedaan:

- 1) De samplestok is uit de opstelling gehaald. Op die manier wordt alleen de bijdrage van de veldverandering aan de respons gemeten. (En een bijdrage als gevolg van ruis in de opstelling, hier kom ik in de volgende paragraaf op terug.)
- 2) Het veld is veranderd van 0G naar een positieve waarde.
- 3) Er zijn achter elkaar door respons-curves opgemeten.
- 4) Van de respons-curves is de helling bepaald. Deze helling is evenredig met de drift van het veld.
- 5) De op deze manier gevonden hellingen zijn uitgezet als functie van de tijd.

Dit experiment is uitgevoerd voor drie waarden van  $\Delta B$ : 100G, 1000G en 10.000G. In figuur 3.2 zien we de resultaten.



Figuur 3.2: Drift in de respons-curve na een veldverandering als functie van de tijd. De drift is bepaald voor drie groottes van de veldverandering.

De vorm van de curves verschilt onderling, maar we kunnen toch wel een aantal conclusies trekken:

- 1) De grootte van de drift is ongeveer rechtevenredig met de grootte van de veldverandering.
- 2) De drift daalt in de eerste paar minuten na de veldverandering snel. In alle drie de gevallen is de drift na ongeveer drie minuten nog maar een kwart van de aanvangswaarde.
- 3) Na de eerste snelle daling blijft de drift nog lang relaxeren. In alle drie de gevallen was de drift na 40 minuten nog niet verdwenen.

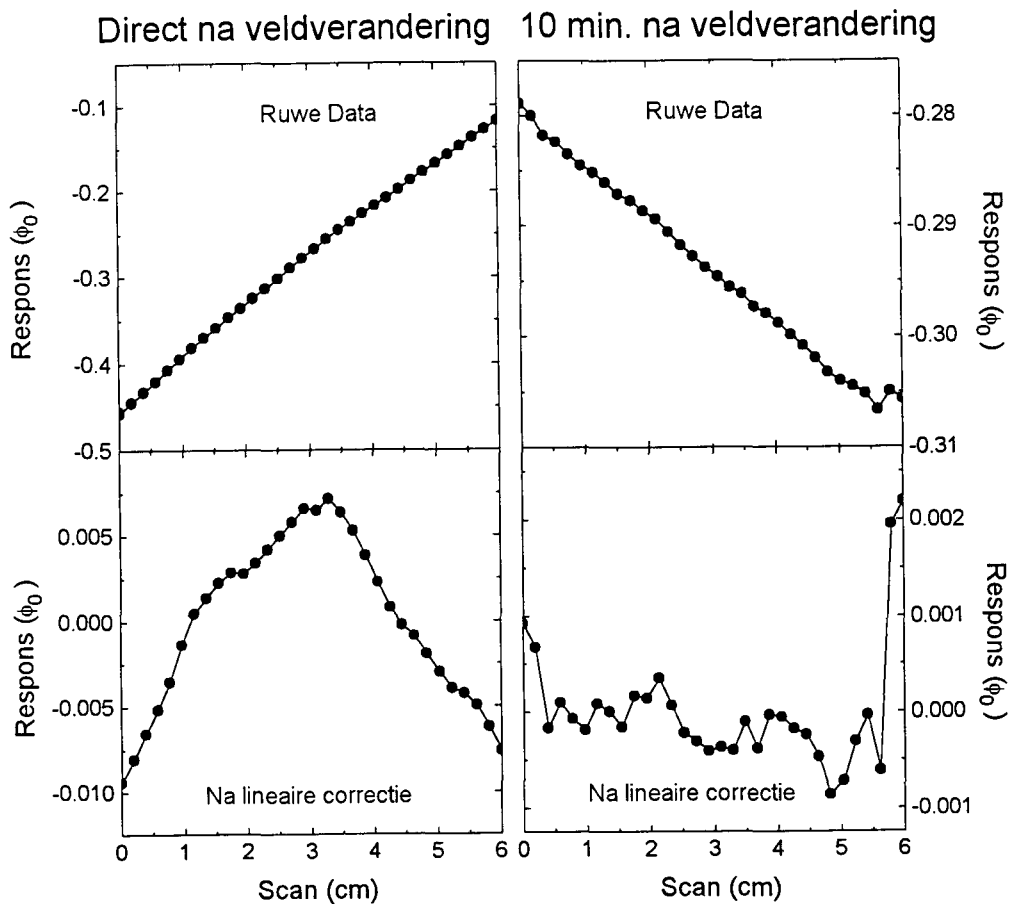
### 3.1.4 Ruis

Het experiment beschreven in de vorige paragraaf bood ook de mogelijkheid te kijken naar de ruis in de meting. We hadden immers de samplestok verwijderd, zodat er maar twee bijdragen aan de respons zijn: een bijdrage t.g.v. drift in het magneetveld en een bijdrage t.g.v. ruis. Als we de gemeten respons-curves corrigeren voor de driftbijdrage, houden we de ruisbijdrage over.

Bij het corrigeren gaan we ervan uit dat de drift lineair in de tijd is. De resultaten in figuur 3.2 lieten zien dat dit niet zo is, maar omdat de tijd die nodig is om een respons-curve op te meten klein is (10 seconden), is lineaire correctie wel gerechtvaardigd.

In figuur 3.3 staan respons-curves voor en na lineaire correctie, gemeten na een veldverandering van 1000G. Eén curve is gemeten direct na de veldverandering, de andere na 10 minuten.

Om response-curves te kunnen vergelijken moeten we ze eerst delen door een calibratiefactor. Op die manier wordt rekening gehouden met het feit dat de metingen gedaan zijn bij verschillende gevoeligheden van de SQUID-elektronica. Deze calibratiefactor is vermeld in het datafile. Als de respons gedeelt is door de calibratiefactor staat langs de verticale as de flux door het oppikspoelenstelsel in eenheden van het fluxquant  $\Phi_0$ .

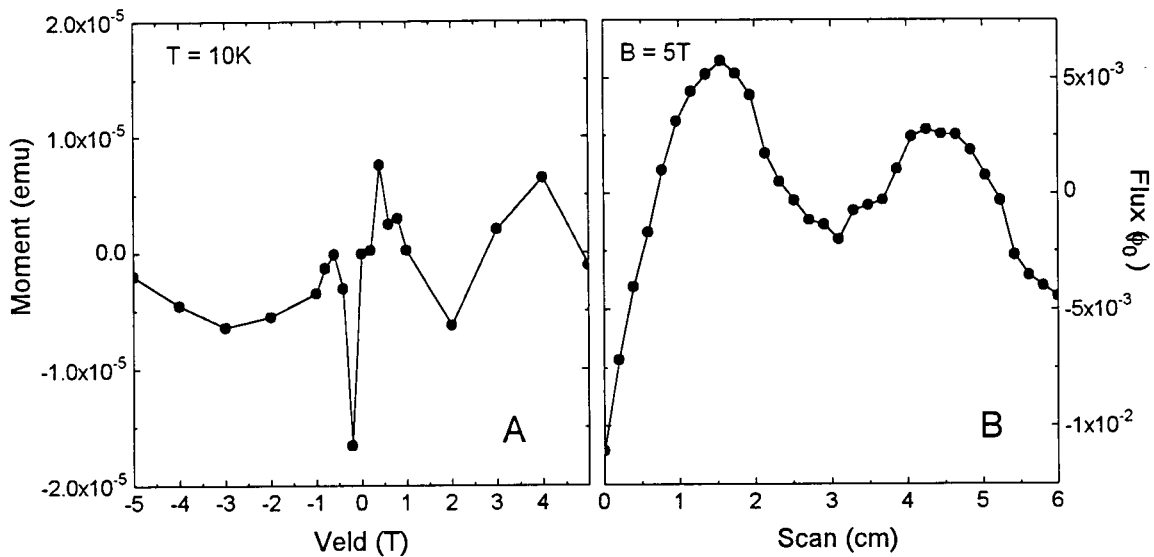


*Figuur 3.3: Ongecorrigeerde en gecorrigeerde respons-curves gemeten na een veldverandering van 1000G. De linker curve is gemeten direct na een veldverandering, de rechter is gemeten na 10 minuten.*

We zien in de ongecorrigeerde curves duidelijk de bijdrage van drift. De gecorrigeerde curves geven de ruisbijdrage weer. We zien dat de ruis afneemt als de drift kleiner wordt. Ditzelfde beeld zien we bij de andere twee metingen ( $\Delta B = 100G$  en  $\Delta B = 1T$ ). De resultaten van die metingen staan in appendix 2. Daaruit blijkt ook dat de ruisbijdragen bij velden van 100G en 1000G ongeveer even groot zijn. De ruis in de meting bij 1T is beduidend groter.

### 3.1.4 Het signaal van de samplehouder

In figuur 3.4a staat een magnetisatiemeting van een lege samplehouder (twee rietjes over elkaar). Zo'n meting lijkt een goede manier om de invloed van de houder op een meting te bekijken. Dit is echter niet zo. Kijken we naar figuur 3.2b dan zien we de gecorrigeerde SQUID-respons van de lege houder bij een veld van 5T. Deze lijkt helemaal niet op de respons van een puntdipool. Aan de momenten die berekend zijn en uitstaan in figuur 3.2a mogen we dan ook geen betekenis hechten.



Figuur 3.4: Resultaat van een magnetisatiemeting aan een lege samplehouder (a) en de SQUID-respons van de houder bij een veld van 5T (b).

De grootte van de SQUID-respons van de lege houder ligt in dezelfde ordegrrootte als de respons gemeten zonder samplestok na een veldverandering van 1000G. Hieruit kunnen we concluderen dat het signaal van de samplehouder geen of weinig invloed heeft op het meetresultaat.

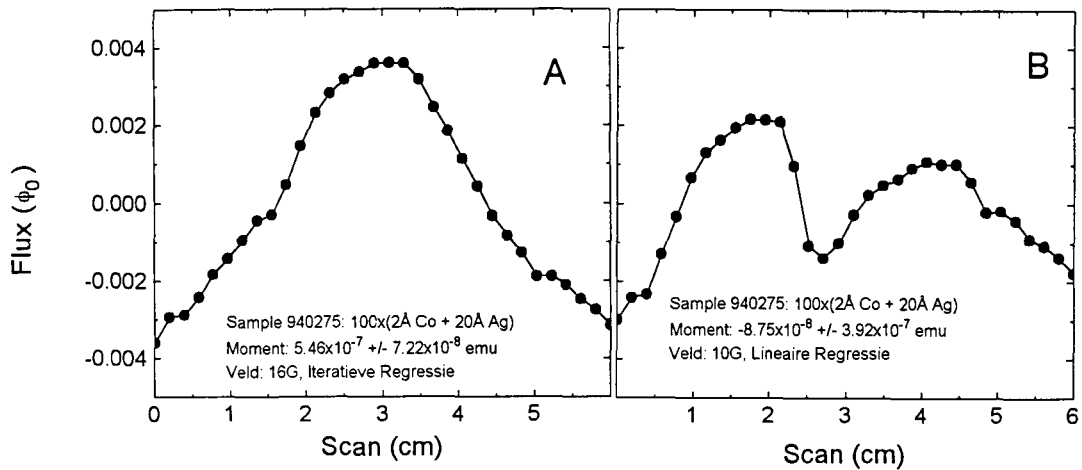
### 3.1.5 Ruis: voorbeeld

Om te onderzoeken welke invloed ruis heeft op het meetresultaat heb ik nader gekeken naar een magnetisatiemeting waarbij kleine momenten zijn gemeten. Het gaat om een meting waarbij het veld in stapjes van 1 Gauss is veranderd van 25 naar -25 Gauss. Na de veldveranderingen is 2 minuten gewacht voor het moment is gemeten. Het sample waaraan gemeten is bestaat uit:  $100 \times (2\text{\AA} \text{ Co} + 20\text{\AA} \text{ Ag})$ . De resultaten van de meting staan in figuur 3.6.

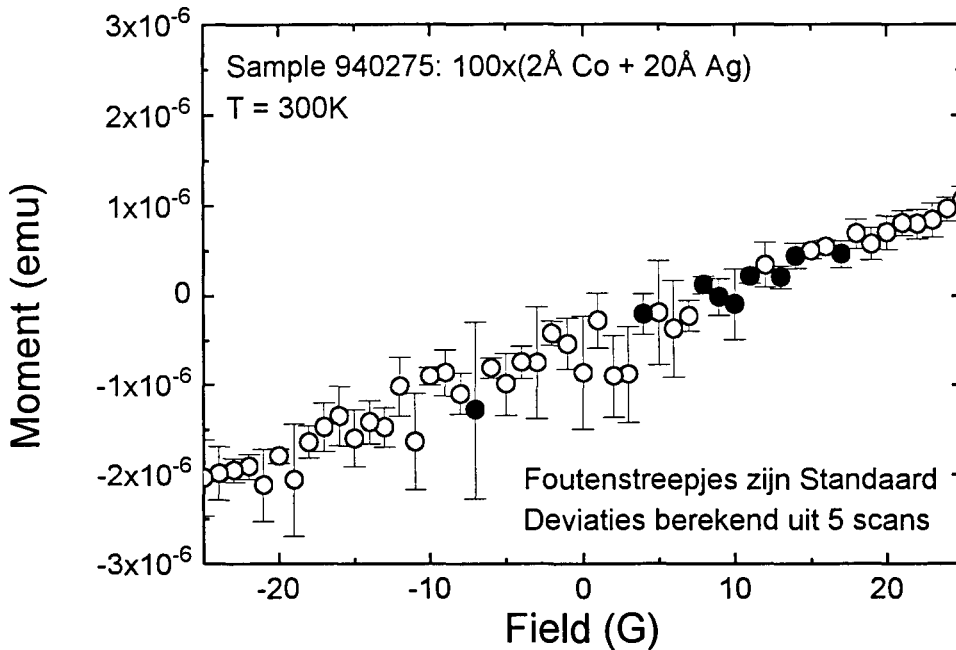
Het eerste dat opvalt in deze figuur is een offset in het veld van ongeveer 10 Gauss. Dit komt doordat er altijd een remanent veld in de supergeleidende magneet blijft. De maximale grootte van deze remanentie is, volgens de specificaties, ongeveer 5 Gauss als wordt gemeten in de Oscillate Mode en ongeveer 20 Gauss als wordt gemeten in de No Overshoot Mode.

In figuur 3.5. staan de respons-curves die zijn gemeten bij velden van 10 en 16 Gauss. Elke respons is het resultaat van vijf middelingen. We zien dat de vorm van de curves afwijkt van de ideale vorm die is berekend in paragraaf 2.4.4. De grootte van de curves is van dezelfde orde als de ruisbijdrage die we hebben gezien in de vorige paragraaf. Uit de respons-curve in figuur

3.5a is met behulp van de iteratieve regressie methode een moment van  $5.5 \times 10^{-7}$  emu bepaald. De standaarddeviatie is  $7.2 \times 10^{-8}$ . Dit is een betrouwbaar resultaat omdat: de iteratieve methode is gebruikt, de deviatie veel kleiner is als het moment en omdat de curve nog enigszins lijkt op een puntdipoolrespons. De respons-curve uit figuur 3.5b kon niet gefit worden met de iteratieve methode. Het meetprogramma is daarom overgegaan tot fitten met de lineaire regressie methode. Dit leverde een moment op van  $-8.8 \times 10^{-8}$  emu en een standaard deviatie van  $3.9 \times 10^{-7}$  emu. Dit resultaat is niet betrouwbaar.



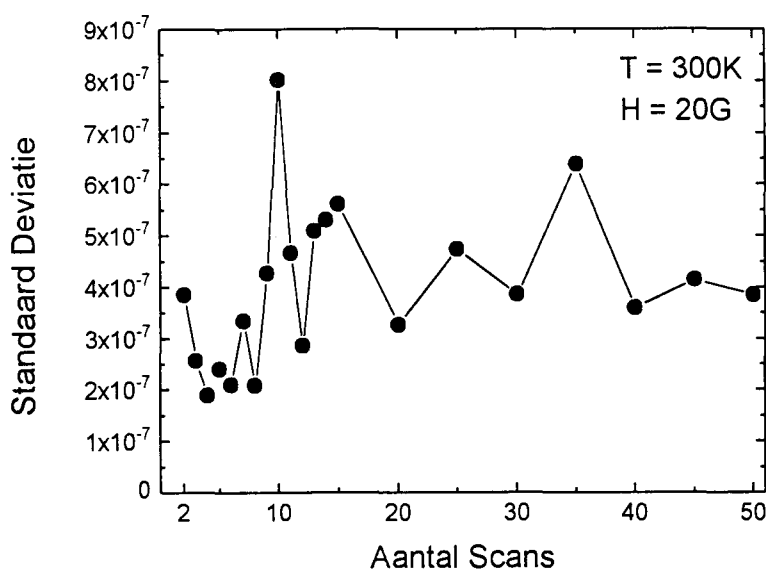
Figuur 3.5: Respons-curves die door de bijdrage van ruis zijn vervormd. De ene curve (a) levert wel een betrouwbaar resultaat op, de andere (b) niet.



Figuur 3.6: Magnetisatiemeting bij kleine velden om de invloed van ruis in de opstelling te kunnen onderzoeken.

Tijdens de gehele meting zijn 20% van de punten bepaald m.b.v. de lineaire regressie methode. Deze meetpunten zijn in figuur 3.5 aangegeven met een dicht cirkeltje. Deze meetpunten bevinden zich allemaal (op één na) in het gebied met momenten kleiner dan  $5 \times 10^{-7}$  emu. Dit is een sterke aanwijzing dat de ruisbijdrage de respons-curves hier te veel vervormt. We kunnen hieruit concluderen dat de absolute nauwkeurigheid van de opstelling ongeveer  $5 \times 10^{-7}$  emu is. Dit komt redelijk overeen met de specificaties:  $10^{-7}$  emu bij velden kleiner dan 1T.

Ook de meetpunten die zijn bepaald met de iteratieve regressie methode vertonen ruis. De standaard deviatie is voor bijna alle punten (90%) in de orde van  $10^{-7}$  emu. Bestudering van andere datafiles laat zien dat de standaard deviatie bijna altijd  $10^{-6}$  tot  $10^{-7}$  emu groot is, ongeacht de grootte van het gemeten moment. De nauwkeurigheid varieert tijdens één meting tussen deze twee waarden. Omdat deze waarden van de standaard deviatie groter zijn dan de gespecificeerde relatieve nauwkeurigheid ( $10^{-8}$  tot  $5 \times 10^{-7}$  emu) is gekeken hoe de standaard deviatie afhangt van het aantal scans dat wordt gemiddeld. Gemeten is bij een temperatuur van 300K en bij een magneetveld van 20G. De resultaten van dit experiment staan in figuur 3.7.



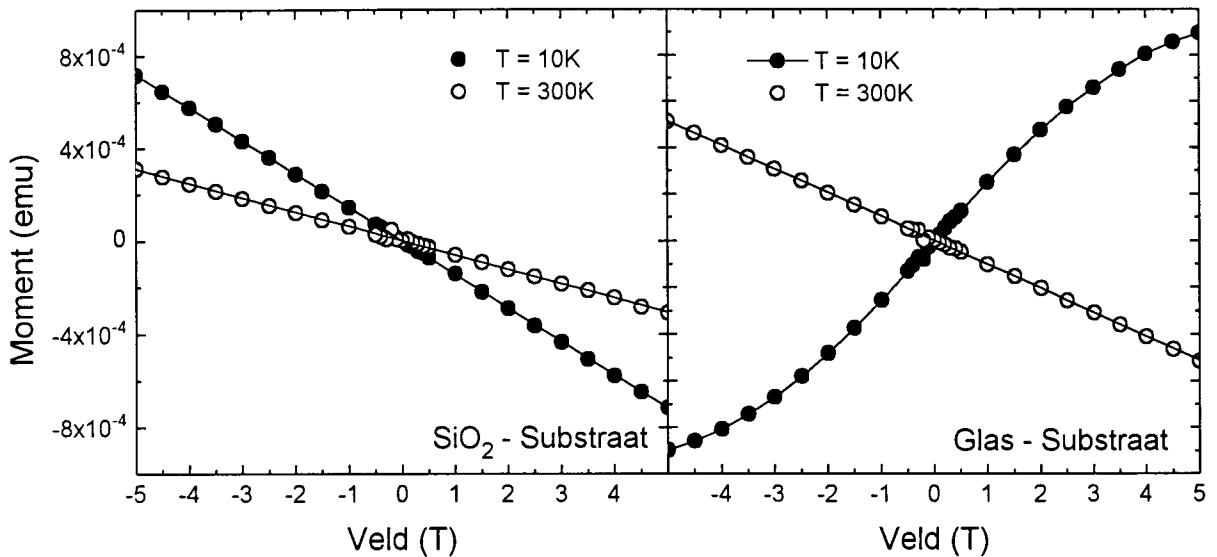
Figuur 3.7: De standaard deviatie in een meting als functie van het aantal scans dat wordt gemiddeld. Het sample bestaat uit:  $100 \times (2 \text{ \AA} \text{ Co} + 20 \text{ \AA} \text{ Ag})$  en gemeten is bij  $T = 300\text{K}$  en  $H = 20\text{G}$ .

We zien dat de standaard deviatie niet veel verandert als functie van het aantal gemiddelde scans. Een verbetering treedt op als tussen de 3 en 8 scans worden gemiddeld, maar daarna stijgt de deviatie weer naar de waarde die ze had bij het middelen van 2 scans. De relatieve nauwkeurigheid blijft dus ongeveer een factor tien groter dan in de specificaties, ook als veel scans worden gemiddeld.

### 3.1.6 Het signaal van het substraat

In figuur 3.8 staan de magnetisatiecurves van een glas-substraat en een  $\text{SiO}_2$ -substraat, allen  $4 \times 12$  mm groot. Elk substraat is twee keer gemeten: een keer bij een temperatuur van 300K en een keer bij 10K. De metingen aan het  $\text{SiO}_2$ -substraat leverden voor beide temperaturen een rechte lijn op. Het glas-substraat levert bij kamertemperatuur een rechte diamagnetische lijn op en bij lage temperaturen en licht gekromde paramagnetische. Voor de bijdrage van substraten

waarvan de magnetisatiecurve een rechte lijn is, kunnen we in veel gevallen corrigeren. Als het moment van de multilagen in een sample verzadigt voor velden lager dan 5T, zal dat moment als functie van het veld niet meer veranderen bij grote veldwaarden. Een helling in de magnetisatiekromme wordt dan veroorzaakt door het substraat. Door de grootte van de helling te bepalen kunnen we corrigeren voor de bijdrage van het substraat.



Figuur 3.8: Magnetisatiecurves van twee soorten substraten. De rechte lijnen door de metingen aan  $\text{SiO}_2$  en de R.T. meting aan glas zijn lineaire fits.

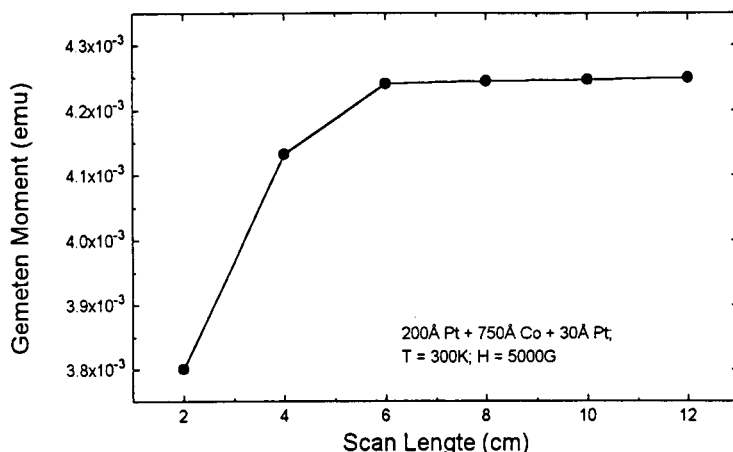
Als een sample dat is gegroeid op een glas-substraat wordt gemeten bij lage temperaturen, hangt het van de grootte van het gemeten moment af of corrigeren mogelijk is. Als het verzadigingsmoment van het sample groter is dan ongeveer  $10^{-3}$  emu, maken we niet zo'n grote fout als we corrigeren m.b.v. een rechte lijn. Dit moet echter per geval bekeken worden. Als het moment van een sample niet verzadigt, of als de bijdrage van het substraat veel van een rechte lijn afwijkt, kan niet worden gecorrigeerd.

### 3.1.7 De Scan Lengte

De Scan Lengte is de afstand waarover het sample wordt bewogen in de z-richting bij het opmeten van een respons-curve. Het blijkt dat de Scan Lengte invloed heeft op de grootte van het gemeten moment. In figuur 3.8 zien we de resultaten van een meting, gedaan met verschillende Scan Lengtes. De momenten zijn bepaald m.b.v. de iteratieve regressie.

We zien dat het gemeten moment sterk toeneemt tot de Scan Lengte 6 cm is. Daarna blijft het moment ongeveer constant. Omdat de opstelling is geijkt met een Scan Lengte van 6 cm, is altijd deze lengte gebruikt.





Figuur 3.9: De invloed van de Scan Lengte op het gemeten moment

## 3.2 CONTROLE VAN DE KWALITEIT VAN EEN METING

### 3.2.1 Inleiding

Als we een meting hebben uitgevoerd willen we graag weten hoe betrouwbaar de resultaten van deze meting zijn. Om dit achteraf te controleren zijn een aantal mogelijkheden. Deze worden in deze paragraaf besproken.

### 3.2.2 Standaard deviatie

Er is een mogelijkheid om voor de bepaling van een meetpunt meerdere scans te middelen. Het programma berekent dan ook de standaard deviatie over deze scans. De standaard deviatie wordt opgenomen in het datafile en is een maat voor de reproduceerbaarheid van een meting.

### 3.2.3 Regression fit

Tijdens een meting wordt niet alleen een datafile aangemaakt, (extensie dat) maar ook een tabelfile (extensie tbl). In deze file staan in kolommen de belangrijkste parameters van een meting, o.a. het magnetische veld waarbij gemeten is, de temperatuur, en het gemeten moment. Een van de kolommen bevat de z.g.n. Regression Fit. Dit is een getal dat een maat is voor de kwaliteit van de fit. Dit getal ligt tussen 0 en 1. Een goede fit heeft een regressie-waarde van ongeveer 0.95 of hoger. Als de regressie-waarde in de buurt van 0.5 komt hebben we te maken met een slechte fit.

### 3.2.4 Gebruikte fit-procedure

In het datafile wordt ook de gebruikte fit-procedure vermeld per datapunt. Zoals in

paragraaf 2.4.6 is gezegd, heb ik altijd de iteratieve regressie methode gebruikt. In dezelfde paragraaf wordt verteld dat het besturingsprogramma van de opstelling automatisch overgaat tot het gebruiken van de lineaire regressie methode als de vorm van de SQUID-respons te veel af gaat wijken van de ideale kromme. Aan de hand van de gebruikte regressie methode is dus na te gaan of de SQUID-respons de goede vorm had.

### **3.3 DE KWALITEIT VAN EEN METING VERBETEREN**

#### **3.3.1 Inleiding**

Er zijn een aantal parameters die men in kan stellen die invloed hebben op het verloop van een meting en op de kwaliteit van de meetresultaten. De belangrijkste zijn: Scans to Average en Pauze before Measurement. In deze paragraaf wordt bekeken wat de invloed van deze parameters is.

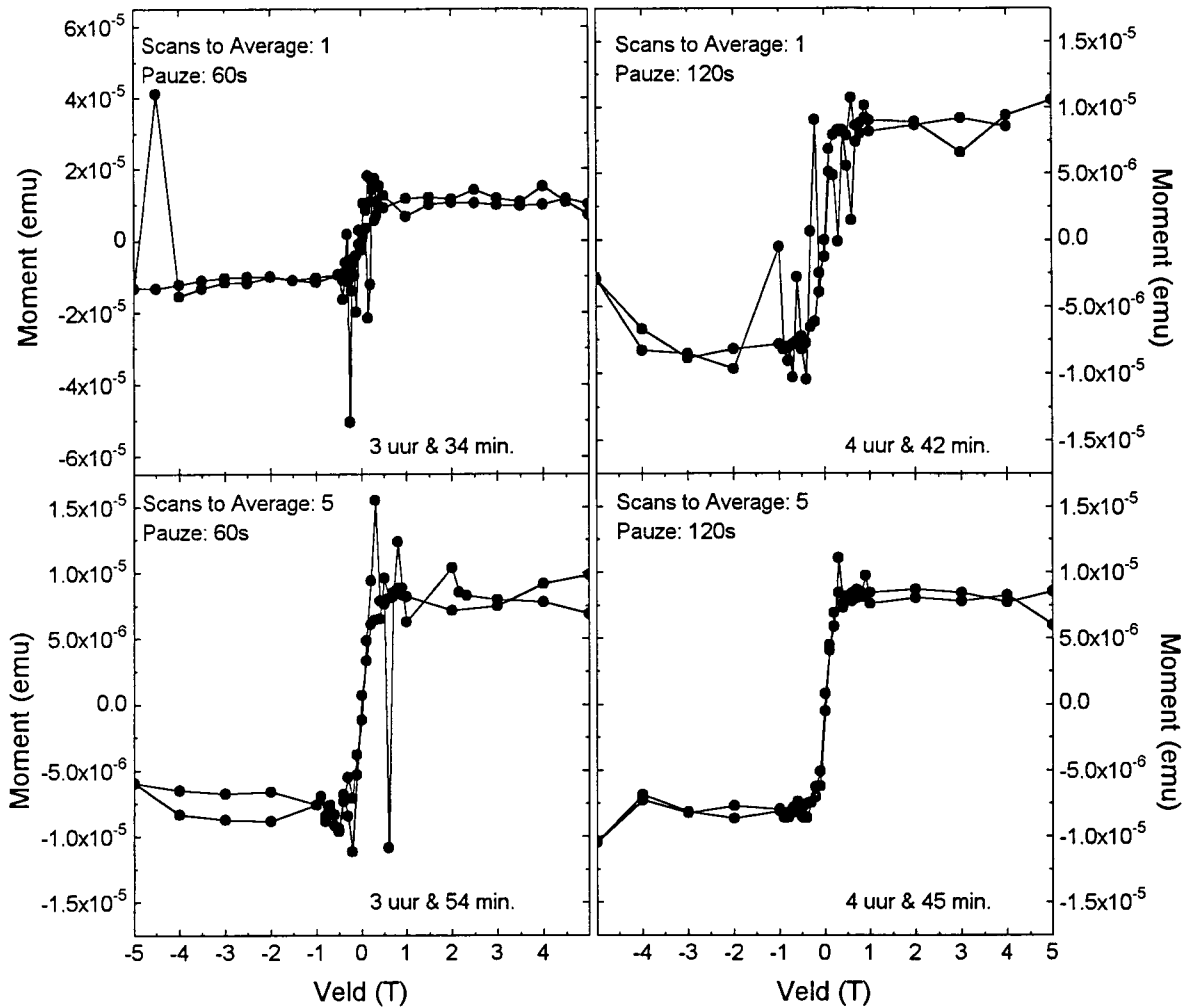
#### **3.3.2 Pauzes & middelen**

Het middelen van een aantal scans heeft twee voordelen: ten eerste wordt de standaard deviatie berekend zodat we een maat hebben voor de nauwkeurigheid van de meting. Ten tweede heeft middelen van meerdere scans een gunstige invloed op de ruis in de meting. Middelen van meerdere scans heeft nagenoeg geen invloed op de duur van een meting, omdat het instellen van het veld en de temperatuur veel langer duurt dan het opmeten van een respons curve. Het instellen van een nieuwe veldwaarde duurt enige minuten. Het instellen van een nieuwe temperatuur duurt al naar gelang van de grootte van de verandering een kwartier tot een uur. Het opmeten van een curve duurt ongeveer 10 seconden.

Door het inlassen van een pauze tussen het instellen van een nieuwe veldwaarde en het meten van het moment krijgt de stroom in supergeleidende spoel de tijd om (enigzins) te relaxeren. We hebben in vorige paragrafen al besproken waarom dit gunstig is voor het meetresultaat.

Voor beide parameters geldt dat het moeilijk is om vaste regels te geven voor het gebruik ervan. Vaak is het een kwestie van proberen en eventueel een meting overnieuw doen. Het is aan te raden om in ieder geval twee scans te middelen, zodat er een schatting voor de nauwkeurigheid is. Als pauze is vaak 30 seconden of een minuut voldoende.

In figuur 3.9 staan vier metingen waarbij de lengte van de pauzes en het aantal scans zijn gevarieerd. Het zijn metingen gedaan bij kamertemperatuur aan een sample dat bestond uit een enkele laag NiO op een glas-substraat. NiO is een anti-ferromagnetische stof en zou dus geen moment moeten hebben. Blijkbaar bevat het sample wat ferromagnetische verontreinigingen. De krommen in de figuur zijn ontstaan na lineaire correctie voor de bijdrage van het substraat. We zien duidelijk hoe langere pauzes en meer scans het resultaat gunstig beïnvloeden. Het beste resultaat wordt verkregen door langere pauzes te nemen en meer scans te middelen. In de figuren staat ook de totale meettijd aangegeven. Pauzes laten een meting veel langer duren terwijl het middelen van meer scans nauwelijks invloed heeft.



Figuur 3.10: De invloed die het middelen van meerdere scans en het inlassen van pauzes heeft op de ruis in een magnetisatiemeting. Het sample bestaat uit een laag NiO op glas, gemeten is bij 300K.

### 3.4 CONCLUSIES

In het afgelopen hoofdstuk zijn de belangrijkste invloeden op de meetnauwkeurigheid aan de orde geweest. We hebben gezien:

- De grootte van het sample heeft invloed op het resultaat. Als een sample kleiner is dan 6 mm blijft de afwijking beperkt tot 4%. Voor samples van 12 mm lang wordt een fout van ongeveer 17% gemaakt. De afwijkingen bij onze samples zijn ongeveer evengroot als de afwijkingen bij cilindervormige samples.
- We hebben nu een ijkgrafiek waarmee we voor de afwijking als gevolg van de samplelengte kunnen corrigeren. Omdat er veel ruis in de grafiek zit blijft er voor langere samples een

onnauwkeurigheid van ongeveer 4%.

- De stroom in de superspoel relaxeert nog enige tijd na een veldverandering. Dit heeft een drift tot gevolg in de respons curve. Als gevolg daarvan zien we meer ruis in een meting.
- Voor de bijdrage van het substraat valt in veel gevallen te corrigeren.
- De gebruikte Scan Lengte heeft invloed op de grootte van het gemeten moment. Omdat altijd één lengte wordt gebruikt is dit geen probleem.
- Ruis in een meting kan worden verminderd door pauzes tussen de meetpunten in te lassen en door meerdere scans te middelen. In de meeste gevallen zijn pauzes van 60 seconde lang genoeg. Het middelen van meer dan 5 scans levert geen verbetering van het resultaat.
- Een samplehouder gemaakt van twee rietjes veroorzaakt nagenoeg geen ruis in de meting.
- De absolute nauwkeurigheid van de opstelling is ongeveer  $5 \times 10^{-7}$  emu. De standaard deviatie is niet constant tijdens een meting maar varieert tussen ongeveer  $10^{-6}$  en  $10^{-7}$  emu, ongeacht de grootte van het gemeten moment. De waarde van de absolute nauwkeurigheid komt redelijk goed overeen met de specificaties ( $10^{-7}$  emu). De waarden van de standaard deviatie is duidelijk groter dan de gespecificeerde relatieve nauwkeurigheid ( $10^{-8}$  tot  $5 \times 10^{-7}$  emu).

## HOOFDSTUK 4: GRANULAIRE Co/Ag MULTILAGEN

In dit hoofdstuk worden magnetisatiemetingen aan Co/Ag multilagen besproken. Deze structuren zijn interessant vanwege hun grootte magnetoweerstand. De samples zijn m.b.v. HV-Magnetron sputteren gegroeid op een Si-substraat bij kamertemperatuur. De samenstelling van deze samples is:  $50\text{\AA} \text{ Ag} + 100x(X\text{\AA} \text{ Co} + 20\text{\AA} \text{ Ag}) + 50\text{\AA} \text{ Ag}$ , met X gelijk aan 2, 4 of 6. De aandacht gaat vooral uit naar de relatie tussen de structurele en magnetische eigenschappen van de samples. De structurele eigenschappen zijn onderzocht m.b.v. NMR-metingen (Nuclear Magnetic Resonance)<sup>11</sup>. Deze experimenten leveren sterke aanwijzingen dat het Co voor dunne nominale dikten ( $< 10\text{\AA}$ ) clusters vormt. In dit hoofdstuk worden magnetisatiemetingen besproken die het bestaan van clusters bevestigen.

We beginnen dit hoofdstuk met een korte bespreking van de resultaten van de NMR-metingen. Daarna wordt gekeken naar magnetisatiemetingen gedaan met een VSM-magnetometer. Deze magnetometer heeft als beperkingen dat alleen bij kamertemperatuur gemeten kan worden en dat het maximale aan te leggen veld 1.6T is. Daarom zijn de samples ook onderzocht m.b.v. de SQUID.

### 4.1 NMR METINGEN

#### 4.1.1 Inleiding

Met behulp van NMR kan op atomair niveau worden gekeken naar de omgeving van de Co-kernen. Er kan onderscheid worden gemaakt tussen Co-atomen in bulk en Co-atomen aan een interface. Het verschil tussen beide gevallen is de omgeving van de Co-atomen: een Co-atoom in de bulk heeft alleen maar Co-buren, terwijl een Co-atoom aan een interface één of meerdere Ag buren heeft. Op deze manier is het mogelijk de verhouding tussen het aantal bulk en het aantal interface atomen te bepalen.<sup>12</sup>

#### 4.1.2 Structuur

In deze paragraaf worden de resultaten van de NMR experimenten kort samengevat. Er zijn twee verschillende gebieden van de nominale Co-dikte ( $t_{\text{Co}}$ ) te onderscheiden:

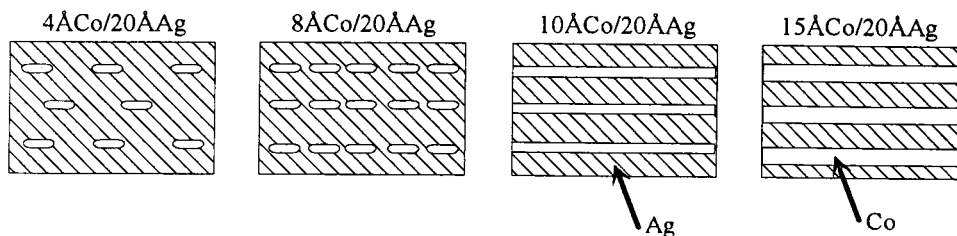
1)  $t_{\text{Co}} < 10\text{\AA}$ : Co-clusters in Ag matrix.

Bij samples met een nominale Co-dikte van  $4\text{\AA}$  (2 monolagen) wordt, naast een interface bijdrage, een bijdrage van bulk atomen gemeten. Dit wijst erop dat het Co in drie dimensionale eilandjes groeit. Als het Co in perfecte lagen zou groeien zou elk Co-atoom aan een interface liggen en zouden we alleen een interface bijdrage in het NMR-sigitaal zien. Als de nominale Co-dikte toeneemt van 4 naar  $10\text{\AA}$  neemt het sigitaal van zowel de interface- als de bulkbijdrage toe. De verhouding tussen de twee bijdragen blijft constant. Dit wijst erop dat de oppervlakte-volume verhouding van de eilandjes gelijk blijft. Hieruit kunnen we in eerste benadering concluderen dat het aantal eilandjes toeneemt met de nominale Co-dikte, zonder dat de eilandjes van vorm of grootte veranderen.

2)  $t_{Co} > 10\text{\AA}$ : Multilagen.

Voor nominale Co-dikten van  $10\text{\AA}$  en groter blijft de intensiteit van het interface signaal constant, terwijl de bulk bijdrage toeneemt. Blijkbaar zijn de eilandjes bij een Co-dikte van  $10\text{\AA}$  aan elkaar gegroeid tot een continue laag.

Uit het feit dat de eilandjes bij een nominale dikte van  $10\text{\AA}$  aan elkaar groeien en het feit dat de verhouding tussen de bulk en de oppervlakte bijdrage beneden  $10\text{\AA}$  ongeveer constant is, volgt dat de eilandjes ongeveer  $10\text{\AA}$  dik zijn. In figuur 4.1 staat een schematische weergave van het model voor de structuur van de Co/Ag multilagen dat volgt uit de NMR metingen.



Figuur 4.1: Schematische weergave van de microstructuur van de ( $X\text{\AA}$  Co +  $20\text{\AA}$  Ag) multilagen met dunne Co lagen<sup>11</sup>.

## 4.2 MAGNETISATIEMETINGEN

### 4.2.1. Inleiding

Om meer bewijs te verkrijgen voor het bestaan van clusters bij kleine nominale Co-dikten zijn magnetisatiemetingen gedaan. In deze paragraaf worden de resultaten voor samples met nominale Co-dikten van 2, 4 en  $6\text{\AA}$  besproken. Eerst wordt gekeken naar metingen bij kamertemperatuur, gedaan in de VSM-opstelling. De momenten zijn zowel in-vlak als loodrecht op het oppervlak van de Co-lagen gemeten. Dit laatste is vanwege de afmetingen van de samples ( $12 \times 4\text{mm}$ ) niet mogelijk in de SQUID. Het magnetische gedrag als functie van het veld en de temperatuur is gemeten met de SQUID.

Een verzameling van kleine ferromagnetische clusters gedraagt zich als een superparamagneet<sup>13</sup>. In de volgende paragraaf zal een inleiding worden gegeven over superparamagnetisme, daarna komen de magnetisatiemetingen aan bod.

### 4.2.2 Superparamagnetisme

Het aantal magnetische domeinen dat wordt gevormd in een ferromagnetisch materiaal is het aantal waarbij de som van de magnetostatische en domeinwand energie minimaal is. Als een steeds groter extern veld wordt aangelegd, verloopt het magnetisatieproces in eerste instantie door het vergroten van domeinen met momenten in de richting van het aangelegde veld, ten koste van de andere domeinen. Als een ferromagnetisch materiaal wordt verdeeld in steeds kleinere clusters,

wordt op een gegeven moment de grootte bereikt waarbij een cluster nog maar één domein kan bevatten. In zulke clusters kan de magnetisatie alleen veranderen door rotatie van de momenten. Dit kost meer energie dan het verplaatsen van domeinwanden. Als we het coërcitieve veld uitzetten tegen de grootte van de clusters neemt  $H_c$  toe als de clusters kleiner worden, om een maximum te bereiken als een cluster nog maar één domein bevat. Als de clusters nog kleiner worden verdwijnt de coërcitiviteit omdat thermische fluctuaties de magnetische ordening van de clusters verstoren. De toestand waarin de clusters zo klein zijn dat de thermische energie van dezelfde grootte orde is als de magnetische energie wordt superparamagnetisch genoemd. In een verzameling van deze clusters gedragen alle clusters zich als enkele supermomenten, zonder onderlinge interactie. Het gedrag van de gehele verzameling lijkt op paramagnetisme, met als verschil dat verzadiging op kan treden bij laboratorium-velden.

De magnetisatie  $M$  van een superparamagneet kan worden beschreven met behulp van de Langevin-vergelijking  $L(x)$ <sup>13</sup>:

$$M = Nm_c L(x) = Nm_c (\tanh(x) - 1/x) \quad 4.1$$

Met:

$$x = \frac{m_c H}{k_B T} \quad 4.2$$

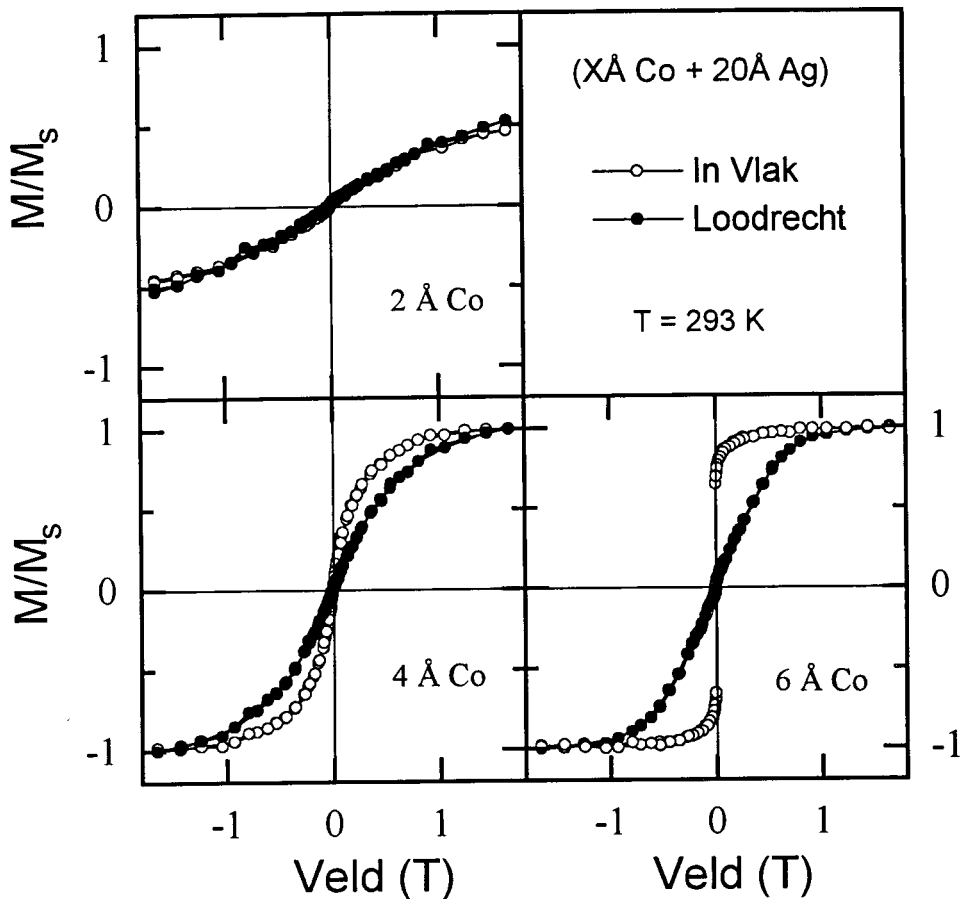
Hierin is  $N$  het aantal clusters per volume-eenheid,  $m_c$  het moment per cluster,  $Nm_c$  de verzadigingsmagnetisatie,  $H$  het aangelegde veld en  $T$  de temperatuur. Bij deze vergelijking wordt ervan uitgegaan dat de momenten van de clusters, en dus ook de clusters zelf, even groot zijn. Als magnetisatie curves horend bij verschillende temperaturen worden uitgezet als functie van  $H/T$ , vallen ze over elkaar. In het geval dat de veldenergie veel kleiner is dan de thermische energie,  $m_c H \ll k_B T$ , gaat vergelijking 4.1 over in:

$$M = \frac{Nm_c^2 H}{3k_B T} \quad 4.3$$

Bij lage temperaturen treedt een verschijnsel op dat 'blocking' heet: de tijd die de momenten van de clusters nodig hebben om zich te richten naar een aangelegd veld wordt erg lang. De momenten worden als het ware 'ingevroren'. De temperatuur waarbij dit gebeurt hangt af van het volume van de clusters en van de anisotropie. Hoe groter het volume en de anisotropie, hoe hoger de blocking-temperatuur.

#### 4.2.3 Magnetisatie als functie van het veld: VSM-metingen

In figuur 4.2 staan de resultaten van de VSM-metingen aan samples met een nominale Co-diktes van 2, 4 en 6 Å. De metingen zijn gedaan met het veld evenwijdig en loodrecht ten opzichte van het film-oppervlak. De magnetische anisotropie (het oppervlak tussen de in-vlak en de loodrechte magnetisatiecurve) neemt af als de nominale Co-dikte afneemt, totdat voor  $t_{Co} = 2 \text{ Å}$  een isotroop gedrag te zien is. Ook de remanente magnetisatie neemt af als de nominale Co-dikte afneemt. De magnetisatie kan alleen maar beschreven worden met vergelijking 4.1 als een sample isotroop gedrag vertoont.



Figuur 4.2: Magnetisatiecurves van samples  $100x(X\text{\AA} \text{Co} + 20\text{\AA} \text{Ag})$  met  $X=2, 4$  of  $6$ . De metingen zijn uitgevoerd in een VSM-magnetometer bij kamertemperatuur.<sup>11</sup>

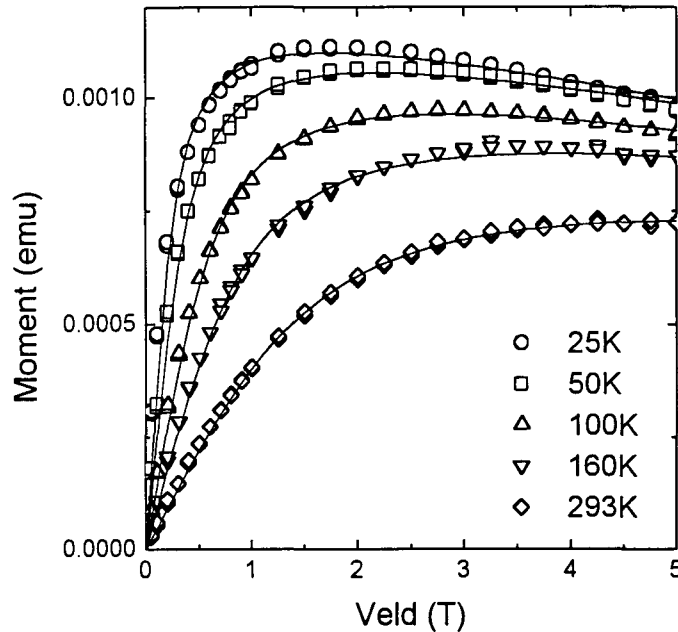
#### 4.2.4 Magnetisatie als functie van het veld: SQUID-metingen

Van het sample met nominale Co dikte  $2\text{\AA}$  is met de SQUID de magnetisatie gemeten als functie van het aangelegde magneetveld. Dit is gedaan voor verschillende temperaturen. In figuur 4.3 staan de resultaten van deze metingen. We zien dat de curves gemeten bij temperaturen lager dan  $160\text{K}$  bij hoge velden een negatieve helling hebben. Deze helling wordt veroorzaakt door diamagnetische bijdragen van het substraat en van het Ag in het sample. Voor deze bijdrage kan niet gecorrigeerd worden omdat niet zeker is of het signaal afkomstig van het Co wel of niet verzadigd is. Daarom zijn de magnetisatiekrommen gefit met behulp van de Langevin-vergelijking en een term die rechtevenredig is met het aangelegde veld:



$$m = M_s L(x) - cH$$

Hierin is  $m$  het moment van het sample,  $M_s$  het verzadigingsmoment van het sample en  $c$  de evenredigheidsconstante die de diamagnetische bijdrage verrekenet. De volgende drie variabelen zijn gevarieerd bij het fitten:  $M_s$ ,  $m_c$  en  $c$ . In tabel 4.1 staan de waarden die zijn gevonden. Verder staat in de tabel  $n$ : het aantal Co-atomen per cluster dat kan worden berekend uit  $m_c$  als men uitgaat van een moment per Co-atoom van 1.79 Bohrmagneton.



Figuur 4.3: Magnetisatie van het sample  $100x(2\text{\AA} \text{ Co} + 20\text{\AA} \text{ Ag})$ , uitgezet als functie van  $H$ . De symbolen zijn de meetpunten, de doorgetrokken lijnen volgen uit de fits.

T (K)	$M_s$ (emu)	$m_c$ (emu)	$c$ (emu/T)	$n$
25	$1.25 \times 10^{-3}$	$3.22 \times 10^{-18}$	$4.66 \times 10^{-5}$	193
50	$1.23 \times 10^{-3}$	$4.43 \times 10^{-18}$	$4.12 \times 10^{-5}$	266
100	$1.18 \times 10^{-3}$	$5.16 \times 10^{-18}$	$3.89 \times 10^{-5}$	309
160	$1.09 \times 10^{-3}$	$5.74 \times 10^{-18}$	$2.76 \times 10^{-5}$	344
293	$9.70 \times 10^{-4}$	$6.07 \times 10^{-18}$	$2.26 \times 10^{-5}$	364

Tabel 4.1: Parameters die horen bij de fits in figuur 4.2

We zien dat de gefitte lijnen redelijk goed door de meetpunten gaan, bij hoge temperaturen iets beter dan bij lage. Dit bevestigt onze verwachting dat het systeem zich superparamagnetisch gedraagt. De gevonden waarde voor het verzadigingsmoment van het sample komt voor de lage temperaturen redelijk overeen met het berekende moment voor het sample:  $1.34 \times 10^{-3}$  emu. Bij deze berekening is uitgegaan van de verzadigingsmagnetisatie van bulk-Co, 1.79T, en de nominale Co-dikte.

Om iets meer te weten te komen over de nauwkeurigheid van de gevonden parameters is

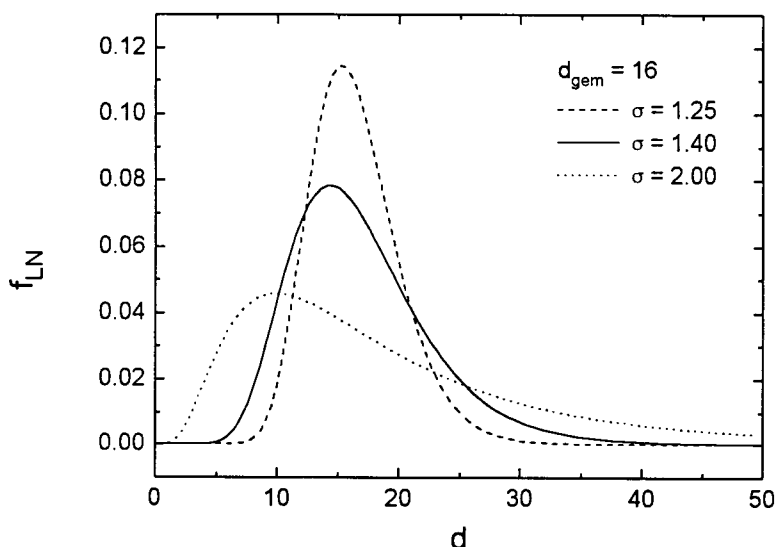
in Appendix 3 nader gekeken naar de vorm van de curves als functie van de fitparameters voor de meting bij 100K. Het blijkt dat de nauwkeurigheid van de parameters ongeveer 5% is.

Eén kanttekening moeten we plaatsen bij deze resultaten: de parameters die gevonden zijn lopen sterk uiteen voor de verschillende temperaturen. De verzadigingsmagnetisatie van bulk-Co neemt af met ongeveer 4% in het temperatuurgebied van 25 tot 300K<sup>8</sup>. Het verzadigingsmoment dat uit de fit is gevonden volgt dezelfde trend, maar varieert veel meer: 22%. Verder zien we het moment per cluster bijna verdubbelen als de temperatuur van 25 naar 300K gaat. Een mogelijke oorzaak voor deze grote temperatuurafhankelijkheid is het feit dat we geen rekening hebben gehouden met spreiding in de grootte van de Co-clusters.

Als Co-atomen worden gesputterd, worden kleine clusters gevormd. Deze clusters groeien samen tot een evenwichtssituatie is ontstaan. Er valt af te leiden dat de logaritme van het volume van de clusters Gaussisch verdeeld is. Voor bolvormige clusters volgt hieruit de volgende verdelingsfunctie:<sup>14</sup>

$$f_{LN}(D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma) D} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(D) - \ln(\bar{D})}{\ln(\sigma)}\right)^2\right) \quad 4.4$$

In deze formule is  $f_{LN}(D)$  de genormaliseerde lognormale verdelingsfunctie en  $D$  is de diameter van de clusters. De parameters  $\bar{D}$ , de gemiddelde diameter, en  $\sigma$ , de standaarddeviatie, bepalen de vorm van de verdeling. In figuur 4.4 staat deze verdelingsfunctie weergegeven.



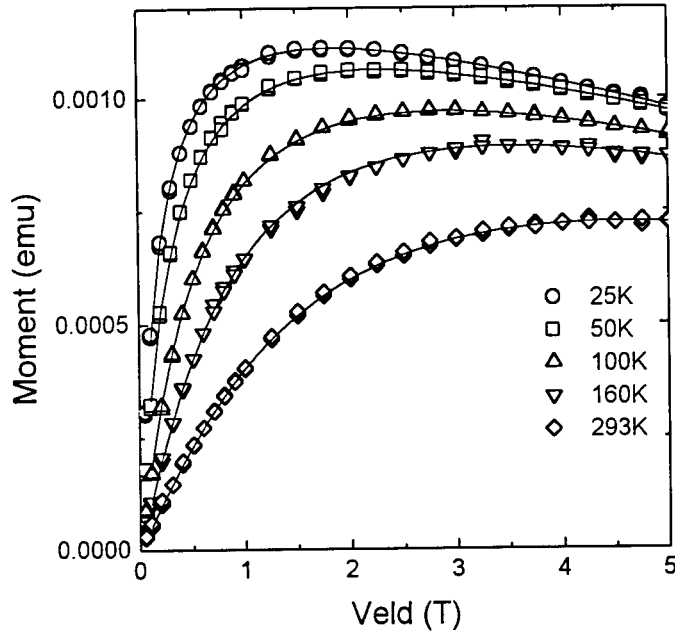
Figuur 4.4: Voorbeelden van lognormale verdelingsfuncties

We kunnen met behulp van deze functie een vergelijking voor het moment opstellen waarin rekening wordt gehouden met de verdeling van de clustergrootte:

$$m = M_s \int_0^{\infty} L(D) f_{LN}(D) dD \quad 4.5$$

De resultaten van de meting aan het sample met een nominale Co dikte van 2Å zijn vergeleken met deze formule. In een computerprogramma dat de magnetisatiecurve uitrekt met

vergelijking 4.5 zijn parameters gevarieerd tot de curves op het oog zo goed mogelijk door de meetpunten lagen. De volgende parameters zijn gevarieerd: de gemiddelde grootte van de clusters,  $\bar{d}$ , de standaarddeviatie,  $\sigma$ , en de helling t.g.v. diamagnetische bijdragen,  $c$ . Voor de verzadigingsmagnetisatie is 1.79T gebruikt, wat voor dit sample overeenkomt met een verzadigingsmoment van  $1.34 \times 10^{-5}$  emu. De resultaten van deze aanpassing staan in figuur 4.5. In tabel 4.2 staan de gevonden parameters. Ook hier is weer  $n$ , het aantal Co-atomen per cluster, berekend. Hierbij is gebruik gemaakt van de gevonden waarde voor  $\bar{d}$ . Dit is een gemiddelde waarde en de gevonden waarde van  $n$  is dus ook een gemiddelde.



Figuur 4.5: Veldafhankelijkheid van de magnetisatie van het sample  $100x(2\text{\AA} \text{ Co} + 20\text{\AA} \text{ Ag})$ , bij verschillende temperaturen. De lijnen zijn bepaald door aanpassing van parameters in vergelijking 4.5.

T(K)	$\sigma$ (Å)	$\bar{d}$ (Å)	$c$ (emu/T)	$n$
25	1.41	16.3	$6.7 \times 10^{-5}$	193
50	1.38	17.6	$6.4 \times 10^{-5}$	243
100	1.32	17.9	$6.5 \times 10^{-5}$	256
160	1.26	17.9	$6.4 \times 10^{-5}$	256
293	1.25	17.6	$6.4 \times 10^{-5}$	243

Tabel 4.2: Parameters die horen bij de aanpassingen in figuur 4.5

We zien dat de curves beter door de meetpunten gaan dan in figuur 4.2. De onzekerheid in de parameters is maximaal 5%, zoals blijkt in Appendix 3. Het blijkt dat alle magnetisatiekrommen te beschrijven zijn met één waarde voor de verzadigingsmagnetisatie. Er is geen rekening gehouden met de temperatuursafhankelijkheid van de verzadigingsmagnetisatie.

De gevonden waarden voor  $\bar{d}$  liggen dicht bij elkaar (verschil  $< 2\%$ ), behalve voor de curve gemeten bij 25K, waar we een lagere waarde vinden. Deze temperatuur ligt dicht bij de

blocking-temperatuur (ongeveer 15K). Waarschijnlijk zijn de grote clusters bij deze temperatuur al 'geblocked', zodat de grootte van de clusters die een bijdrage leveren aan de magnetisatie gemiddeld kleiner is. De waarden voor  $\sigma$  komen goed overeen met waarden uit de literatuur voor vergelijkbare structuren<sup>15,16</sup>.

#### 4.2.4 Magnetisatie als functie van de temperatuur

De magnetisatie is ook als functie van de temperatuur gemeten. Dit is gedaan op twee manieren.

- 1) Zero Field Cooled (ZFC) meting: het sample wordt zonder veld afgekoeld, waarna een klein veld (50G) wordt aangelegd. Daarna wordt bij oplopende temperatuur gemeten.
- 2) Field Cooled (FC) meting: het sample wordt afgekoeld terwijl er een klein veld is aangelegd. Daarna wordt weer bij oplopende temperatuur het moment gemeten.

In figuur 4.6 zijn de resultaten van deze metingen weergegeven voor drie Co/Ag samples met nominale Co-dikten van 2, 4 en 6Å.

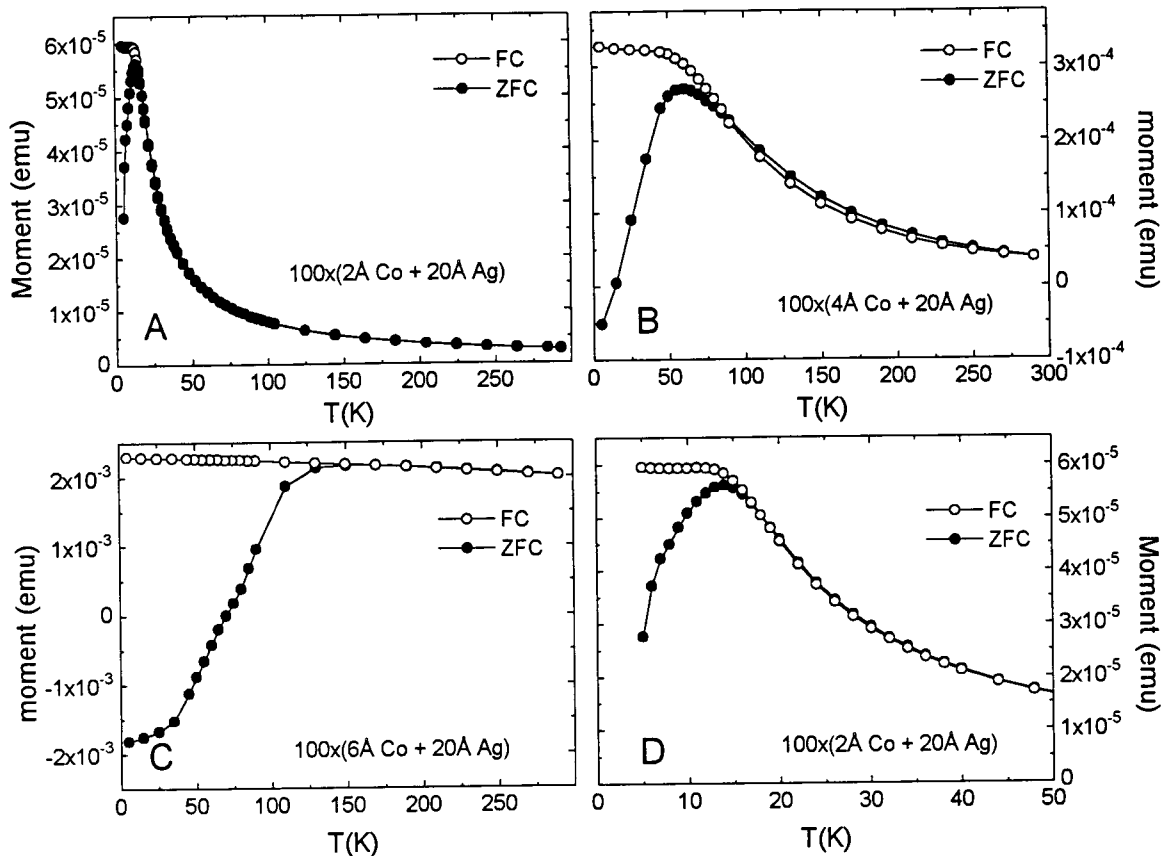
Het verschil tussen de ZFC en FC curves bij nominale dikten van 2 en 4Å is te verklaren door blocking. Als een klein veld wordt aangelegd tijdens het afkoelen zullen de momenten een beetje worden gericht. Als de temperatuur lager wordt dan de blocking-temperatuur zullen de momenten 'vastvriezen': het moment verandert dan weinig meer als functie van de temperatuur. Als zonder veld wordt afgekoeld, zullen de momenten in random oriëntaties vastvriezen. Tijdens het opwarmen met een klein veld aangelegd zullen eerst de kleinste momenten loskomen, tot bij de blocking temperatuur geen enkel moment meer geblocked is. Bij temperaturen boven de blockingtemperatuur gedraagt de magnetisatie zich paramagnetisch ( $\sim 1/T$ ) zoals beschreven in vergelijking 4.3.

De blocking temperatuur van het sample met een nominale Co-dikte van 2Å is lager dan die van het sample met een Co-dikte van 4Å. Dit wijst erop dat de clusters in het eerste geval kleiner zijn. Het bestaan van een blocking-temperatuur bij dikten van 2 en 4Å is een bevestiging dat het Co in clusters groeit.

Het gedrag van het sample met een nominale Co-dikte van 6Å lijkt meer ferromagnetisch:

- 1) De magnetisatie als functie van de temperatuur voor hogere temperaturen is niet paramagnetisch ( $\sim 1/T$ ) zoals bij de samples waarin  $t_{Co}$  2 of 4Å Co is, maar ferromagnetisch (bijna constant)
- 2) Uit de VSM-metingen (figuur 4.2) bleek dat het sample een remanente magnetisatie heeft. Hierdoor heeft het moment een waarde ongelijk aan nul bij lage temperaturen in de ZFC-meting. Aan de hand van magnetisatiekrommen ( $M(H)$ ) gemeten bij verschillende temperaturen is het verloop van de ZFC- en FC-curves te verklaren.

Het feit dat de ZFC- en FC-resultaten er bij het sample met een Co-dikte van 6Å anders uitzien wil nog niet zeggen dat er geen clusters zijn. Er kan alleen worden gesteld dat het systeem niet superparamagnetisch is. Dit komt doordat er ferromagnetische interactie tussen de clusters is. Dit kan komen omdat ze dicht bij elkaar liggen. De invloed van pinholes (verbindingen tussen Co-clusters door de Ag-tussenlagen heen) is dan ook groter omdat zo'n verbinding nu niet twee clusters koppelt maar gedeelten van lagen met Co-clusters.



Figuur 4.6: ZFC en FC metingen aan drie samples met samenstelling  $100x(X\text{\AA} \text{ Co} + 20\text{\AA} \text{ Ag})$ . Hierin was  $X$  gelijk aan 2 (a) en (d), 4 (b) en 6 (c).

### 4.3 CONCLUSIES

In dit hoofdstuk zijn magnetisatiemetingen gepresenteerd die zijn uitgevoerd aan Co/Ag multilagen met kleine nominale Co-dikten. Uit het gedrag van de magnetisatie als functie van het aangelegde veld en van de temperatuur kunnen we concluderen dat er Co-clusters worden gevormd:

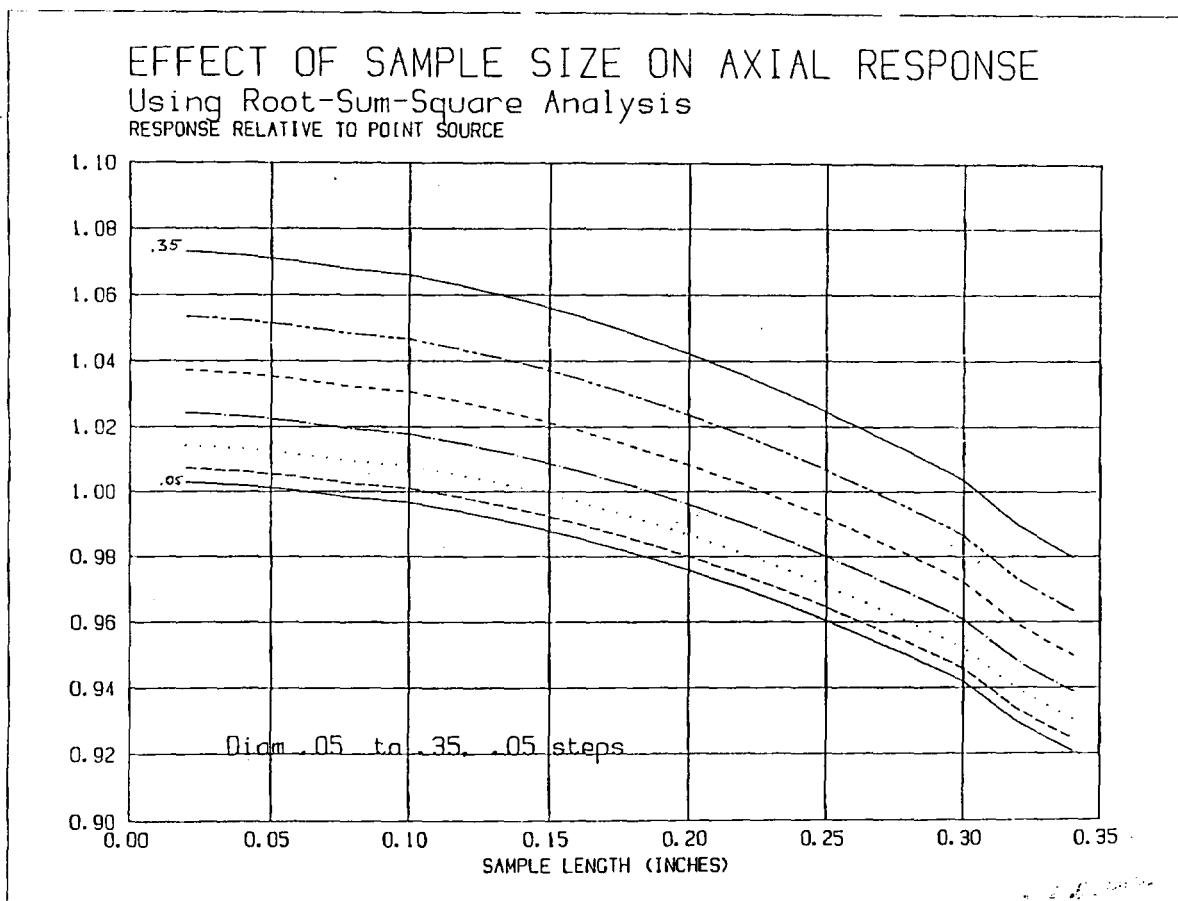
- 1) De magnetisatie als functie van het aangelegde veld vertoont een superparamagnetisch gedrag, dat te beschrijven is met behulp van de Langevin-vergelijking,
- 2) De magnetisatie als functie van de temperatuur laat een verschil zien tussen ZFC- en FC-metingen dat te wijten is aan het bestaan van een blocking-temperatuur.

We hebben m.b.v. de lognormale verdelingsfunctie temperatuuronafhankelijke parameters gevonden die de magnetisatie beschrijven. Hierbij is aangenomen dat de verzadigingsmagnetisatie constant is als functie van de temperatuur. Deze aanname blijkt binnen de gevonden nauwkeurigheid (ongeveer 5%) gerechtvaardigd. Door uit te gaan van een verdeling van de clustergrootte wordt de fysische werkelijkheid beter beschreven. De gevonden curves gaan dan ook beter door de meetpunten dan bij de methode waarbij een constante clustergrootte is aangenomen.



## APPENDIX 1: CYLINDERVORMIGE SAMPLES

In figuur A1 staat een grafiek die is opgestuurd door de fabrikant van de SQUID. Weergegeven is de lengte- en diameterafhankelijkheid van het gemeten moment voor cilindervormige samples. De verschillende curves horen bij verschillende diameters. Eén inch is 2.54 cm, dus de horizontale schaal loopt van 0 tot 8.9 mm.



Figuur A1: Lengte- en diameterafhankelijkheid van het gemeten moment van cilindervormige samples.

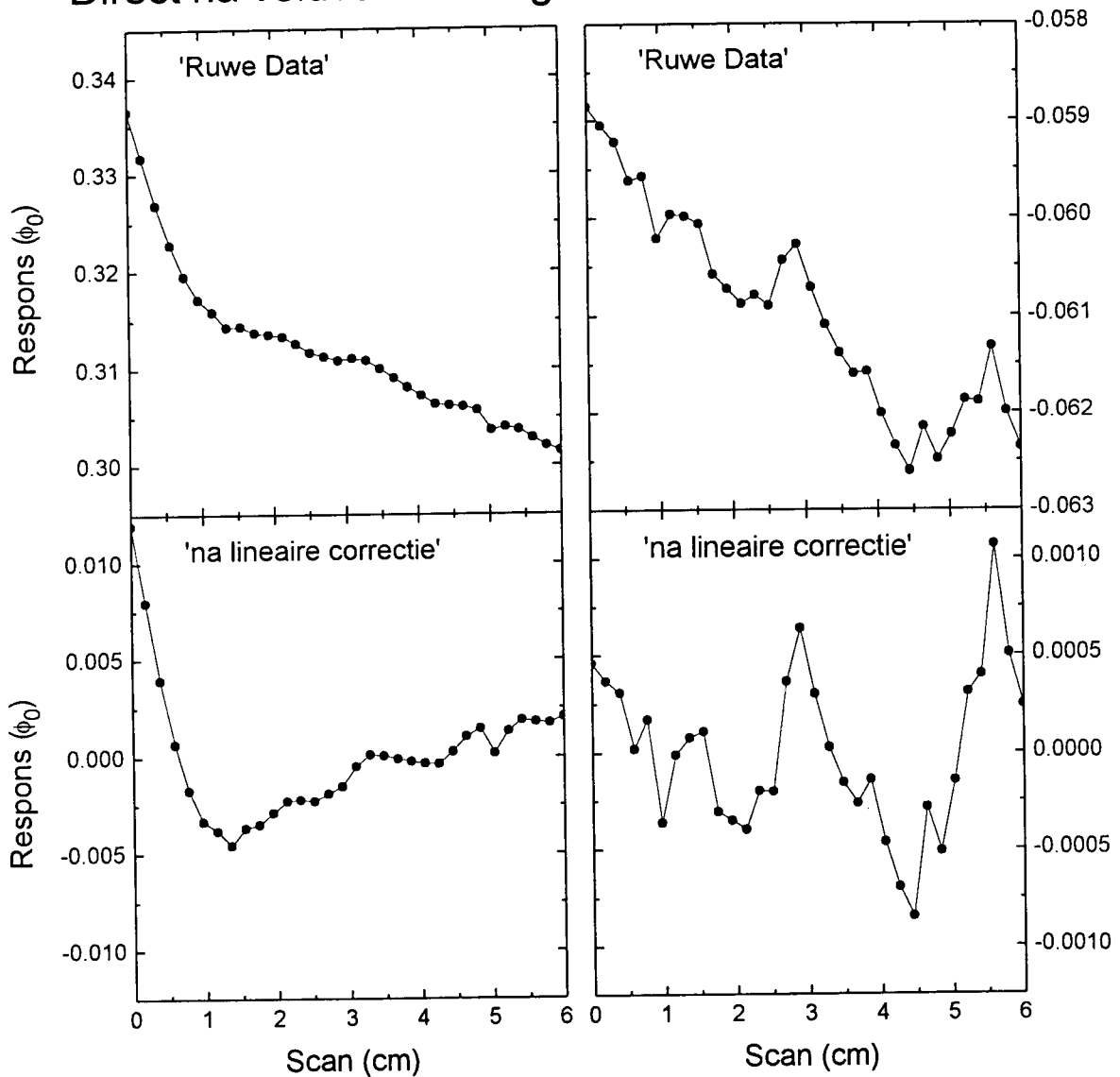




## APPENDIX 2: DRIFT

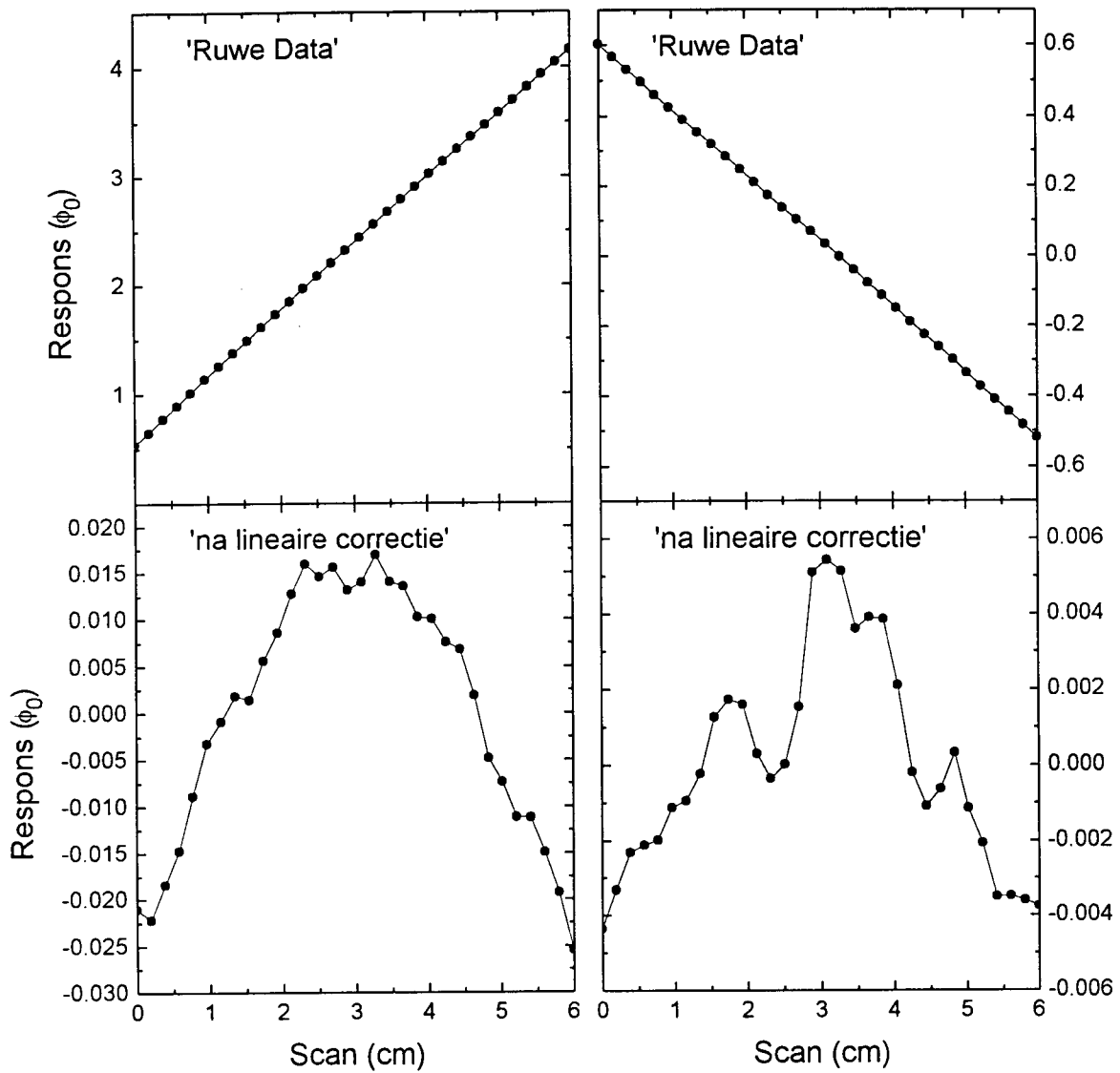
In paragraaf 3.1.4 wordt gekeken naar de vorm van de SQUID-respons na een veldverandering. In die paragraaf staan de responsen weergegeven na een veldverandering van 1000 Gauss. In deze Appendix staan de responsen na veldveranderingen van 100 Gauss en 1 Tesla.

Direct na veldverandering      10 min. na veldverandering



*Figuur A2: Ongecorrigeerde en gecorrigeerde respons-curves gemeten na een veldverandering van 100G. De linker curve is gemeten direct na een veldverandering, de rechter is gemeten na 10 minuten.*

## Direct na veldverandering 10 min. na veldverandering

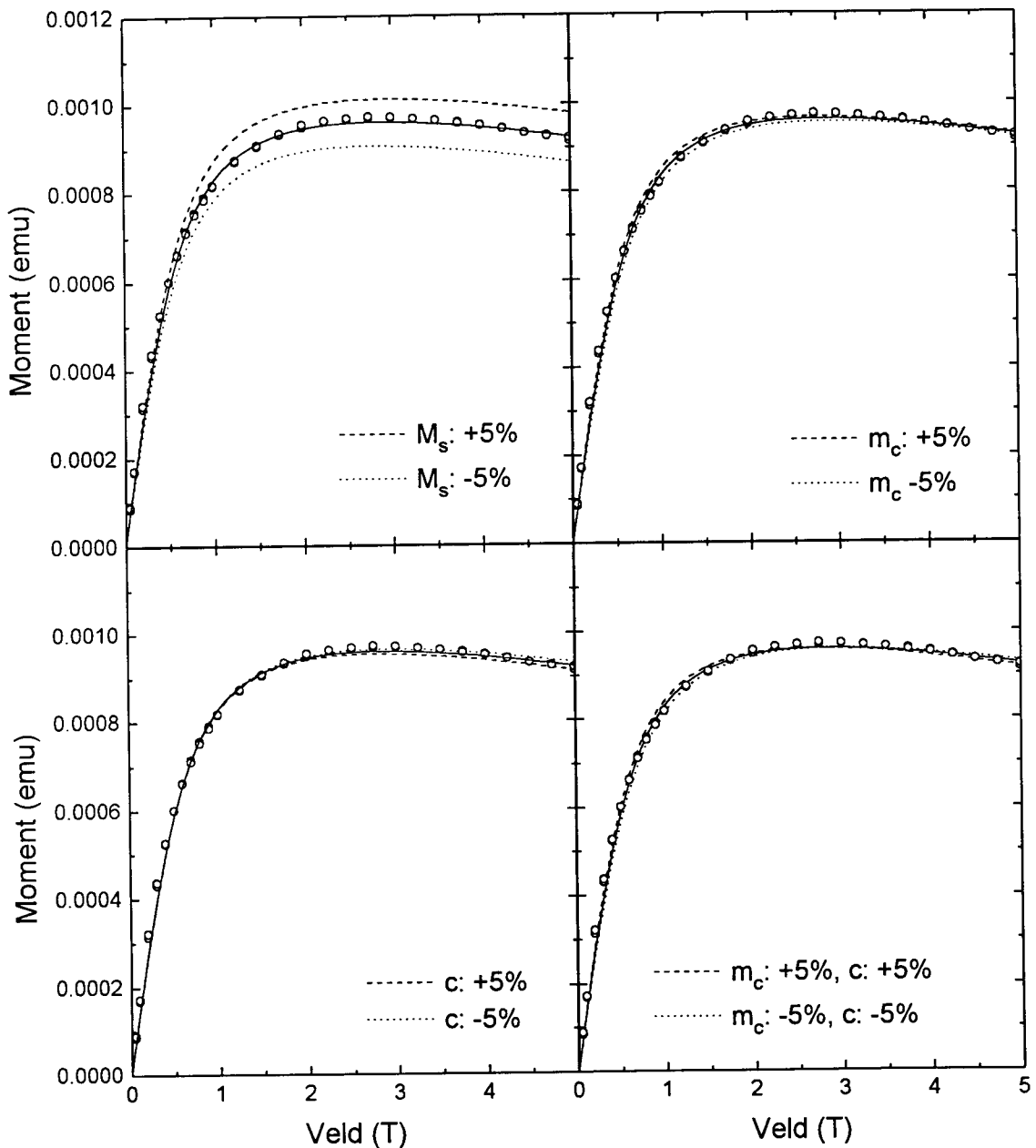


*Figuur A3: Ongecorrigeerde en gecorrigeerde respons-curves gemeten na een veldverandering van 1T. De linker curve is gemeten direct na de veldverandering, de rechter is gemeten na 10 minuten.*

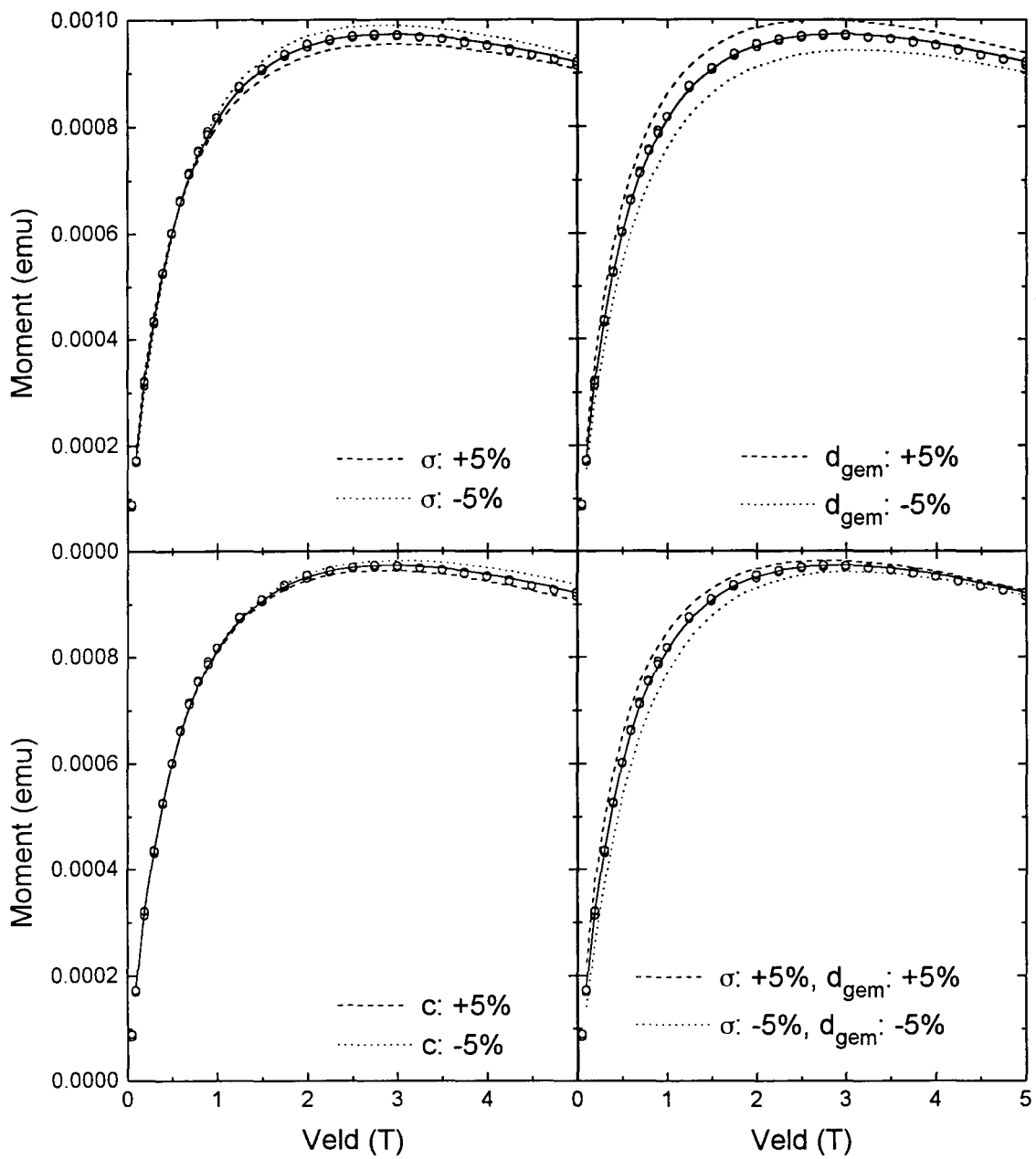
## APPENDIX 3: FIT & AANPASSING

In hoofdstuk 4 zijn een fit en een aanpassing gemaakt door meetpunten van een magnetisatiemeting. De fit is gemaakt m.b.v. de Langevin-vergelijking, de aanpassing is gemaakt m.b.v. de Langevin-vergelijking waarbij rekening is gehouden met de spreiding in de grootte van de clusters.

In de figuren A4 en A5 staat weergegeven hoe de curves veranderen als één of twee van de parameters met 5% wordt gevarieerd, terwijl de andere parameters gelijk worden gehouden. De doorgetrokken lijnen in de figuren zijn de oplossingen die zijn gepresenteerd in hoofdstuk 4. De gestippelde lijnen zijn het resultaat van variatie van de parameters.



Figuur A4: Variaties van de gevonden parameters bij de fit m.b.v. de Langevin-vergelijking.



*Figuur A5: Variaties van de parameters gevonden door aanpassing van de Langevin-vergelijking waarin rekening wordt gehouden met spreiding van de cluster grootte.*

## REFERENTIES

- (1) A. Barone en G. Paternò, *Physics and Applications of the Josephson Effect*, John Wiley & Sons (1982).
- (2) J.C. Gallop, *SQUIDS, the Josephson Effect and Superconducting Electronics*, Adam Hilger (1991)
- (3) B.B. Schwartz en S. Foner (Editors) *Superconductor Applications: SQUIDS and Machines*, Plenum Press (1976)
- (4) K.K. Likharev, *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*, Gordon and Breach Science Publishers (1986)
- (5) G. Rickayzen, *Theory of Superconductivity*, John Wiley & Sons (1965)
- (6) J.R. Schrieffer, *Theory of Superconductivity*, W.A. Benjamin (1964)
- (7) M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, McGraw-Hill Book Company (1975)
- (8) C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics, Sixth Edition*, John Wiley & Sons (1986)
- (9) *Magnetic Property Measuring System User Manual*, Quantum Design Inc. (1990/1994)
- (10) *MPMS Horizontal Rotator User Manual*, Quantum Design Inc. (1994)
- (11) E.A.M. van Alphen en W.J.M. de Jonge, Phys. Rev. B **51**, 8182 (1995)
- (12) H.A.M. de Gronckel, *The nanostructure of multilayered films*, Proefschrift Technische Universiteit Eindhoven (1993)
- (13) R.P. Reed en A.F. Clark (editors), *Materials at low temperatures*, American Society for Metals (1983)
- (14) C.G. Granqvist en R.A. Buhrman, J. Appl. Phys. **47**, 2200 (1976)
- (15) S.B. Slade, F.T. Parker en A.E. Berkowitz, J. Appl. Phys. **75**, 6613 (1994)
- (16) Gang Xiao en C.L. Chien, J. Appl. Phys. **61**, 3308 (1987)



# DANKWOORD

Bedankt allemaal!

Een speciaal woord van dank voor de mensen zonder wie ik het echt niet had gered:

Marc Willekens voor alle tijd die hij voor mij vrij heeft willen maken. Als ik hem nodig had was hij er en dat was andersom weleens anders; Coen Swüste voor de bijspiijkercursus 'Programmeren in Pascal voor N8.3'; Erwin van Alphen voor de hulp bij hoofdstuk 4 en Wim de Jonge voor het mogelijk maken van mijn afstuderen.